

# THÈSES

PRÉSENTÉES

## A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

### LE TITRE D'INGÉNIEUR-DOCTEUR

PAR

**Lydie KOCH née MIRAMOND**

---

#### PREMIÈRE THÈSE

Étude de la fluorescence des gaz rares excités par des particules nucléaires chargées.  
Utilisation pour la détection des rayonnements nucléaires par scintillation.

#### DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la faculté

---

Soutenues le 22 décembre 1959 devant la Commission d'examen

MM. F. PERRIN

Président

R. LUCAS

J. TEILLAC

J. LABEYRIE

} Examineurs

Invité



# THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES  
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE TITRE D'INGÉNIEUR-DOCTEUR

PAR

**Lydie KOCH née MIRAMOND**

---

PREMIÈRE THÈSE

Étude de la fluorescence des gaz rares excités par des particules nucléaires chargées.  
Utilisation pour la détection des rayonnements nucléaires par scintillation.

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la faculté

---

Soutenues le 22 décembre 1959 devant la Commission d'examen

MM. F. PERRIN

Président

R. LUCAS

J. TEILLAC

J. LABEYRIE

} Examineurs

Invité

# FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

## PROFESSEURS

DOYEN ..... J. PERES

|               |                                           |                  |                                               |
|---------------|-------------------------------------------|------------------|-----------------------------------------------|
| G. JULIA      | T Analyse sup. & Algèbre sup.             | KIRRMANN         | T Théories chimiques                          |
| DE BROGLIE    | T Théories physique                       | CHADEFAUD        | T Botanique                                   |
| PRENANT       | T Anatomie et Histol. comparées           | Mlle LE BRETON   | T Physiol. générale                           |
| PERES         | T Mécan. des Fluides et applications      | SALEM            | T Mathématiques Générales                     |
| BARRABE       | T Géol. struct. et Géol. appliquée        | LELONG           | T Mathématiques Générales                     |
| J. BOURCART   | T Géogr. physique et Géol. dynamique      | DEVILLERS        | T Anatomie et Histologie comparées            |
| PLANTEFOL     | T Botanique                               | EHRESMANN        | T Topologie algébrique                        |
| GRASSE        | T Evolution des êtres organisés           | FRANCON          | T Physique (S. P. C. N.)                      |
| PREVOST       | T Chimie organique                        | GLANGEAUD        | T Géogr. physique et Géol. dynamique          |
| BOULIGAND     | T Application de l'analyse à la Géométrie | GODEMENT         | T Mathématiques (M. P. C.)                    |
| CHAUDRON      | T Chimie appliquée                        | PISOT            | T Calcul des Probabilités                     |
| WYART         | T Minéralogie                             | ROCH E.          | T Géologie                                    |
| TEISSIER      | T Zoologie                                | SCHATZMANN       | T Astrophysique                               |
| MANGENOT      | T Biol. Végétale                          | TERMIER          | T Paléontologie stratigraphique.              |
| P. AUGER      | T Physique quantique et relativité        | ZAMANSKY         | T Mathématiques Générales                     |
| MONNIER       | T Physiol. générale                       | LENNUIER         | T Physique (M. G. P.)                         |
| PIVETEAU      | T Paléontologie                           | RIZET            | T Génétique                                   |
| ROCARD        | T Physique (E. N. S.)                     | ROUTHIER         | T Géologie Appliquée                          |
| H. CARTAN     | T Mathématiques (E. N. S.)                | Mme TONNELAT     | T Phys. théor.                                |
| LAFFITTE      | T Chimie générale                         | DIXMIER          | T Mathématiques (M. P. C.)                    |
| FAVARD        | T Géométrie supérieure                    | SOUCHAY          | T Chimie générale                             |
| COULOMB       | T Physique du Globe                       | AIGRAIN          | T Electrotechnique                            |
| Mlle COUSIN   | T Biol. animale (S. P. C. N.)             | BRUSSET          | T Chimie minérale                             |
| CHRETIEN      | T Chimie minérale                         | M. LEVY          | T Physique théorique                          |
| P. DRACH      | T Zoologie                                | Mme CHAIX        | T Chimie biologique                           |
| KASTLER       | T Physique (E. N. S.)                     | Mme HUREL-PY     | T Biol. Végétale (P. C. B.)                   |
| EPHRUSSI      | T Génétique                               | PIAUX            | T Chimie (P. C. B.)                           |
| WURMSER       | T Biologie physico-chimique               | BRUN             | T Mécanique expérimentale des fluides         |
| RIVIERE       | T Géologie (S. P. C. N.)                  | LEDERER          | T Chimie des substances organiques naturelles |
| GAUTHERET     | T Biol. végétale (P. C. B.)               | Mme DUBREIL      | T Mathématiques                               |
| LUCAS         | T Recherches physiques                    | Mme LE LONG      | T Mathématiques (E. N. S.)                    |
| A. THOMAS     | T Biologie cellulaire                     | BELLAIR          | T Géologie (S. P. C. N.)                      |
| ARNULF        | T Optique appliquée                       | COTTE            | T Physique (M. P. C.)                         |
| M. MORAND     | T Enseignement de Physique                | DUBOIS J. E.     | T Chimie (S. P. C. N.)                        |
| SOLEILLET     | T Physique                                | LAMOTTE          | T Zoologie (E. N. S.)                         |
| FORTIER       | T Mécanique exper. des fluides            | MICHEL André     | T Chimie (S. P. C. N.)                        |
| DANJON        | T Astronomie                              | OLMER            | T Energétique Générale                        |
| PETIT         | T Biologie maritime                       | ROUAULT          | T Physique Générale                           |
| QUENEY        | T Météorologie et dynamique atmosphérique | GAUTHIER         | T Méc. appliquée                              |
| GALLIEN       | T Embryologie                             | BARCHEWITZ       | T Chimie Physique                             |
| EICHHORN      | T Biologie Végétale (S. P. C. N.)         | BROSSEL          | T Physique atomique                           |
| DE CUGNAC     | T Biologie Végétale (S. P. C. N.)         | BUSER            | T Biologie animale (P. C. B.)                 |
| Mlle CAUCHOIS | T Chimie Physique                         | CAMUS            | T Biol. Vég. (P. C. B.)                       |
| THELLIER      | T Physique du Globe                       | CASTAING         | T Physique Générale                           |
| L'HERITIER    | T Génétique                               | CURIEN           | T Minéralogie et cristallographie             |
| GRIVET        | T Radioélectricité                        | MOYSE            | T Physiologie Végétale                        |
| PONCIN        | T Mécanique Générale                      | PANNETIER        | T Chimie (S. P. C. N.)                        |
| DUBREIL       | T Arithmétique et théorie des nombres     | POSSOMPES        | T Biologie Animale (P. C. B.)                 |
| QUELET        | T Chimie organique                        | PULLMANN         | T Chimie Théorique                            |
| CAGNIARD      | T Géophysique appliquée                   | TEILLAC          | T Physique Nucléaire et Radioactivité         |
| CHAMPETIER    | T Chimie macromoléculaire                 | TONNELAT         | T Biol. physico-chimique                      |
| CUVILLIER     | T Micropaléontologie                      | VILLE            | T Econométrie                                 |
| JUNG          | T Pétrographie                            | WILLEMART        | T Chimie (P. C. B.)                           |
| TRILLAT       | T Microscopie et diffraction électronique | DODE             | T Chimie                                      |
| WIEMANN       | T Chimie organique et structurale         | FREYMAN          | T Physique (S. P. C. N.)                      |
| JACQUINOT     | T Spectroscopie et physique céleste       | GUINOCHET        | T Biol. Vég. (ORSAY)                          |
| VASSY         | T Physique de l'Atmosphère                | ROLLET           | T Chimie (P. C. B.)                           |
| DESTOUCHES    | T Théories physiques                      | Mlle JOSIEN      | T Chimie (P. C. B.)                           |
| M. PRUVOST    | T Géologie                                | CHEVALLEY        | T Géométrie Algébrique et théorie des groupes |
| AMIEL         | T Chimie générale (P. C. B.)              | ARNOULT          | T Physique (Orsay)                            |
| HOCART        | T Minéralogie                             | CHAPELLE         | T Physique (P. C. B.)                         |
| J. P. MATHIEU | T Physique (P. C. B.)                     | DELANGE          | T Mathématiques (Orsay)                       |
| COUTEAUX      | T Biol. Animale (P. C. B.)                | DENY             | T Mathématiques (Orsay)                       |
| MAY           | T Biol. Animale (P. C. B.)                | GERMAIN P.       | T Mécan. théor. des fluides.                  |
| CHOQUET       | T Calcul différentiel et Intégral         | LUCAS G.         | T Géologie                                    |
| FELDMANN      | T Biologie (P. C. B.)                     | ALLARD           | T Chimie Physique                             |
| GUINIER       | T Physique des solides                    | BERTHELOT        | T Phys. Nucl. et Radioactivité                |
| JOST          | T Physiol. comparée                       | BRICARD          | T Météorologie et Phys. de l'atmosphère       |
| FORTET        | T Calcul des probabilités                 | Mme ALBE-FESSARD | T Psycho-Physiol.                             |
| SCHWARTZ      | T Calcul différentiel et Intégral         | FRIEDEL          | T Physique des Solides                        |
| CHOUARD       | T Physiologie Végétale                    | M. JULIA         | T Etude des Molécules organiques complexes    |
| MALAVARD      | T Aviation                                | LENDER           | T Biol. Animale (S.P.C.N.) Orsay              |
| BRELOT        | T Calcul différentiel                     | MAGAT            | T Physico-chimie des Rayonn.                  |
| NORMANT       | T Chimie organique                        | Mlle QUINTIN     | T Electrochimie                               |
| BENARD        | T Chimie minérale                         | MONOT            | T Chimie du métabolisme                       |
| BUVAT         | T Botanique (E. N. S.)                    | BENOIT           | T Physiologie animale                         |
| DUGUE         | T Statistiques mathém.                    | DE POSSEL        | T Analyse numérique                           |
| GELOSO        | T Chimie (S. P. C. N.)                    | CHARLOT          | T Chimie analytique                           |
| SOULAIRAC     | T Psychophysologie                        | HAISSINSKY       | T Radiochimie                                 |
| ULRICH        | T Physiologie Végétale                    |                  |                                               |
| MARECHAL      | T Optique théorique et appliquée          |                  |                                               |



SECRETAIRE GENERAL .... C. MONIER

Je tiens tout d'abord à exprimer ma reconnaissance à M. le Haut-Commissaire Francis Perrin pour le bienveillant encouragement qu'il m'a donné.

Je remercie M. Jean Teillac des conseils qu'il m'a généreusement prodigués.

Que M. Maurice Surdin trouve ici l'expression de ma gratitude pour l'intérêt qu'il a toujours témoigné pour ces recherches.

Ce m'est un devoir particulièrement agréable de remercier M. Jacques Labeyrie pour l'appui que j'ai constamment trouvé auprès de lui et pour les conseils précieux qu'il m'a donnés.

L'appareillage et une partie des mesures décrites dans les chapitres IV et V ont été réalisés en collaboration avec M. Robert Lesueur. Je le remercie vivement pour le concours très précieux qu'il m'a constamment apporté.

Je remercie également M. Robert Bomal avec le concours duquel certaines des mesures qui concernent la détection des neutrons et des produits de fission ont été réalisées.

Que MM. Yves Koechlin et Jacques Mey trouvent ici l'expression de ma reconnaissance pour leur aide en ce qui concerne la mesure des temps très courts et la réalisation de l'appareillage électronique à faible temps de résolution.

## SOMMAIRE

|                                                                                         | Pages |
|-----------------------------------------------------------------------------------------|-------|
| I - AVANT-PROPOS.....                                                                   | 5     |
| II - INTRODUCTION                                                                       |       |
| - Rappel historique.....                                                                | 7     |
| - Problèmes posés - Mesures effectuées.....                                             | 9     |
| III - DONNEES THEORIQUES ET EXPERIMENTALES                                              |       |
| - Cas des gaz monoatomiques purs.....                                                   | 12    |
| - Cas des gaz polyatomiques.....                                                        | 17    |
| - Cas des mélanges de gaz.....                                                          | 18    |
| IV - ETUDE EXPERIMENTALE - MECANISMES FONDAMENTAUX DE LA LUMINESCENCE<br>DES GAZ RARES  |       |
| - Dispositif expérimental.....                                                          | 19    |
| - Etude du spectre d'émission des gaz purs.....                                         | 27    |
| - Spectres d'émission des mélanges - Transfert d'énergie.....                           | 35    |
| - Durée de vie des états excités.....                                                   | 39    |
| - Influence des recombinaisons ioniques sur la luminescence.....                        | 53    |
| V - CARACTERISTIQUES DES SCINTILLATEURS GAZEUX                                          |       |
| - Définition des caractéristiques nécessaires d'un scintillateur.....                   | 57    |
| - Rendement de conversion des gaz.....                                                  | 57    |
| - Résolution en énergie.....                                                            | 64    |
| - Rendement quantique.....                                                              | 65    |
| VI - APPLICATIONS DES SCINTILLATEURS GAZEUX A LA DETECTION DES PARTICULES<br>NUCLEAIRES |       |
| - Détection des ions lourds.....                                                        | 71    |
| - Détection des neutrons thermiques.....                                                | 72    |
| - Détection des neutrons rapides.....                                                   | 74    |
| VII - CONCLUSIONS.....                                                                  | 75    |

## AVANT PROPOS

Les progrès réalisés en physique nucléaire sont liés en partie à l'évolution de l'appareillage électronique et des détecteurs de particules. Parmi ceux-ci le détecteur à scintillation est devenu un instrument indispensable dans tous les domaines de la recherche ; en continuelle évolution il permet des travaux aussi variés que la définition de coïncidences dans des intervalles de temps de quelques  $10^{-10}$  s et les mesures d'énergie de protons de plusieurs MeV avec une résolution de 100 KeV.

Les chambres d'ionisation et les compteurs proportionnels font appel principalement aux gaz, par contre jusqu'à ces dernières années les scintillateurs n'ont été constitués que de solides - minéraux ou organiques - et de liquides ; il a donc paru logique, compte-tenu de ce que l'on savait par ailleurs sur la luminescence des gaz, d'étudier le comportement de ceux-ci comme scintillateurs. Ce travail a été entrepris d'une façon systématique dans un certain nombre de laboratoires depuis 1954 et depuis 1956 par le Service d'Electronique Physique du Commissariat à l'Energie Atomique au Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay.



## II

### INTRODUCTION

Quand une particule ionisante d'énergie suffisante traverse un gaz, elle transmet son énergie aux atomes ou molécules du gaz par chocs inélastiques et les porte à des niveaux d'excitation et d'ionisation variés. Le retour à l'état fondamental peut s'accompagner d'une émission de lumière. C'est cette émission que nous étudions ici.

#### 2-1. RAPPEL HISTORIQUE.

##### 2-1-1. Réactions chimiques dans les gaz causées par les rayons $\alpha$ .

Dès le début des études sur la radioactivité on s'est aperçu que les sources intenses de rayons  $\alpha$  placées dans l'air étaient entourées d'une fluorescence bleue qu'on attribuait à l'excitation des molécules d'azote et d'oxygène par les particules  $\alpha$  [1]. L'examen spectrographique de la lumière émise [2] prouva que l'azote était le principal responsable de cette fluorescence.

On savait d'autre part que les rayons  $\alpha$  pouvaient produire des réactions chimiques dans les gaz et que, inversement certaines réactions chimiques dans les gaz s'accompagnaient d'une émission de rayons ultra-violet. C'est donc dans le but de mieux comprendre les réactions photo-chimiques que les premiers expérimentateurs étudièrent la fluorescence des gaz soumis au rayonnement  $\alpha$ . Ils mesuraient l'intensité totale du rayonnement émis à l'aide de photo-compteurs à iodure de cuivre [3].

##### 2-1-2. Etudes de la lumière aurorale.

Dans un tout autre domaine, depuis la mise en évidence par Meinel [6] des raies de Balmer déplacées par effet Doppler dans le spectre de la haute atmosphère, les géophysiciens pensent que la lumière aurorale est due en partie à l'excitation des molécules gazeuses par les protons de quelques GeV à quelques  $10^6$  GeV provenant du soleil. On fut donc amené à étudier la fluorescence des gaz traversés par des protons rapides et des ions tels que  $D^2$  II,  $He^4$  II,  $Li^7$  II,  $Ne^{20}$  II obtenus dans des accélérateurs [7], [8], [9].

Ces études ont permis de mettre en évidence les mécanismes responsables de l'excitation de chaque niveau particulier :

- a) excitation directe par choc de l'ion incident ;
- b) échange de charge qui peut laisser les 2 atomes excités ;
- c) excitation par choc avec un atome rapide résultant d'un échange de charge ;
- d) excitation par électrons secondaires accélérés ou non par un champ électrique.

Les sections efficaces ont pu être déterminées dans un certain nombre de cas.

##### 2-1-3. Rôle de la luminescence dans les décharges électriques et les compteurs de Geiger-Muller.

Un troisième domaine dans lequel l'émission de photons par les atomes de gaz excités joue également un rôle essentiel est celui des décharges électriques dans les gaz. L'étude spectrale de la décharge permet de déterminer la température électronique, de reconnaître la nature et le degré de pureté du gaz [10]. Depuis 1956 environ, de nombreux travaux ont été réalisés dans divers pays à l'occasion des études effectuées en vue d'obtenir la fusion contrôlée. Comme ces travaux avaient pour but essentiel la détermination des températures atteintes et l'identification des éléments présents dans le plasma, et non l'étude du mécanisme d'émission de lumière, nous n'en parlerons pas davantage ici (\*).

-----  
(\* ) On trouvera les principaux articles décrivant ces travaux dans les compte-rendus de la 2ème Conférence Internationale pour les applications de l'Energie Atomique à des fins pacifiques (Genève, Sept. 1958) et dans les compte-rendus des 3ème (Venise 1957) et 4ème (Uppsala 1959) Congrès Internationaux sur l'ionisation dans les gaz.

Dans les tubes à décharge et en particulier dans les compteurs de Geiger-Muller, les photons ultra-violetes provenant de la désexcitation des atomes de gaz créent une ionisation supplémentaire dans le gaz qui permet à la décharge de se propager le long du fil. Dans les compteurs non autocoupeurs ils créent en outre des décharges parasites par effet photoélectrique sur la cathode. Dans les tubes à décharge à électrodes planes, cet effet photoélectrique sur la cathode constitue l'un des "effets secondaires" qui explique la croissance "anormale" de la densité de courant  $j$  dans la phase qui précède immédiatement la décharge autonome:  $J > J e^{\alpha a}$  où  $\alpha$  est le premier coefficient de Townsend, et  $a$  la distance des électrodes [11].

En ce qui concerne les compteurs de Geiger, le rôle de certaines vapeurs organiques pour absorber les photons a été étudié en 1950 par Metzger, Baldinger et Huber [5] et le rôle des états métastables des gaz rares dans la production des photons ultra-violetes, responsables de l'effet photoélectrique à la cathode, a été étudié particulièrement en 1952 par L. Colli et U. Facchini [29] et [30]. Dans le cas de l'argon les temps d'émission des photons et leurs variations avec la pression ont permis à ces derniers auteurs de mettre en évidence un mécanisme particulier de destruction des atomes métastables par collision avec 2 atomes normaux et formation d'une molécule excitée instable émettant un ou plusieurs photons au cours de sa dissociation et de son retour à l'état fondamental.

#### 2-1-4. Détection des particules nucléaires par scintillation dans les gaz.

Bien que des essais positifs de comptage des particules  $\alpha$  par la scintillation qu'elles produisent dans l'air aient été effectués en 1950 par J. Labeyrie avec des photocompteurs à cathode de ferro-nickel [4], c'est grâce à l'utilisation des photomultiplicateurs que l'étude du mécanisme de l'émission de lumière liée au passage d'une seule particule nucléaire dans un gaz, a pu être entreprise.

En 1951, A. E. Grunn et E. Shopper [19] dans le but de déclencher une chambre de Wilson avec la scintillation produite dans un gaz par la particule incidente, montrèrent que cette scintillation est facilement détectable par un photomultiplicateur classique type I. P. 28 R. C. A. Ils montrèrent que le rendement quantique de l'azote ou de l'argon est environ 100 fois plus grand que celui de l'hydrogène, de l'oxygène et du gaz carbonique. Le montage expérimental utilisé qui est le type de tous ceux réalisés par la suite est représenté sur la figure 1.

En 1953, C. Muehlhause indépendamment pensa à utiliser un gaz comme scintillateur pour des expériences de physique nucléaire [12]. On disposait alors :

1/ De scintillateurs minéraux, halogénures et sulfures, dont les durées de luminescence sont supérieures à  $10^{-7}$  s et pour lesquels l'intensité de la luminescence est proportionnelle à l'énergie perdue par les électrons, les protons et les deutons dans un large domaine d'énergie mais dépend de la perte spécifique d'énergie de la particule [13].

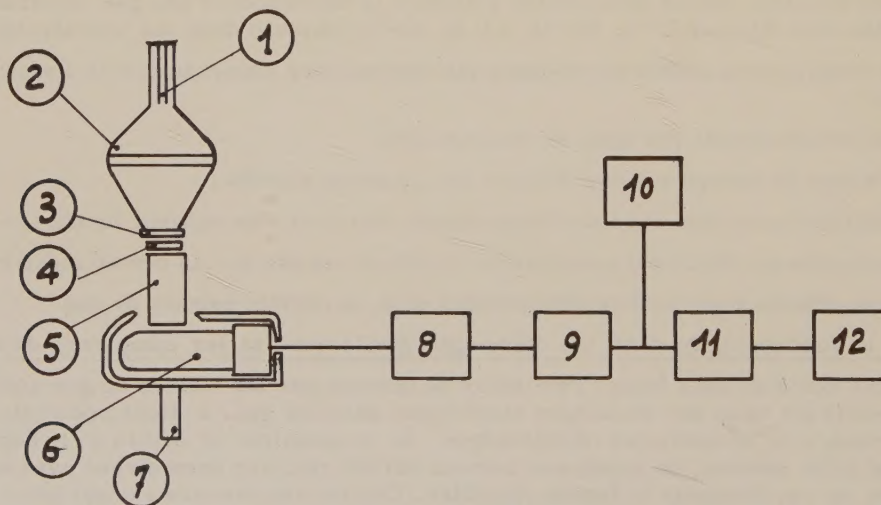


Figure 1 - Dispositif d'étude des scintillations dans les gaz.

- |                                        |                                   |
|----------------------------------------|-----------------------------------|
| 1 - Source de rayons $\alpha$          | 7 - Dispositif de refroidissement |
| 2 - Ampoule contenant le gaz à étudier | 8 - Preamplificateur              |
| 3 - Fenêtre de quartz                  | 9 - Amplificateur                 |
| 4 - Filtre                             | 10 - Oscilloscope                 |
| 5 - Conduit de lumière                 | 11 - Discriminateur               |
| 6 - Photomultiplicateur                | 12 - Echelle de comptage          |

2/ De scintillateurs organiques dont les temps de luminescence sont compris entre quelques  $10^{-9}$  s et quelques  $10^{-8}$  s mais pour lesquels dans aucun cas, l'amplitude de l'impulsion de lumière émise n'est proportionnelle à l'énergie perdue par la particule dans le milieu.

D'une façon générale, le rendement de luminescence (\*) dépend de la perte spécifique d'énergie de la particule dans le milieu traversé : plus la perte spécifique d'énergie est grande plus le rendement est faible.

Or un type au moins de mesures nucléaires nécessite la mise au point de scintillateurs nouveaux : c'est l'étude des réactions nucléaires mettant en jeu des ions lourds. Cette étude demande en effet des scintillateurs donnant une réponse proportionnelle à l'énergie et ceci dans un très grand domaine d'énergie et pour des ions dont la perte spécifique d'énergie est très grande : c'est le cas en particulier des ions de fission pour lesquels  $\frac{\delta E}{\delta x}$  atteint 70 MeV par cm dans l'argon.

Le fait que dans de nombreux cas ces ions sont accompagnés de flux intenses de particules plus légères - électrons ou rayons  $\alpha$  - rend nécessaire un scintillateur dont la durée de luminescence soit aussi courte que possible de façon à éviter l'empilement des impulsions électroniques dans le photomultiplicateur.

Un grand nombre de laboratoires a entrepris des travaux sur les scintillateurs gazeux depuis 1953. Dans la plupart des cas cependant ils s'agissait de résoudre simplement un problème de détection et seules quelques caractéristiques particulières de la scintillation étaient mesurées [14] à [24].

Quelques chercheurs ont essayé d'éclaircir les mécanismes fondamentaux intervenant dans la luminescence des gaz [25] à [27]. Le caractère technologique de la plupart des études publiées rend difficile une synthèse des résultats obtenus, ceux-ci étant valables pour une géométrie particulière et pour un gaz dont le degré de pureté n'est jamais déterminé.

Qualitativement ce qui caractérise la luminescence excitée dans un gaz rare par une particule  $\alpha$ , par exemple, est :

- la rapidité d'émission de la lumière ;
- le grand nombre de photons émis, du même ordre de grandeur qu'avec les meilleurs scintillateurs solides ou liquides classiques ;
- la proportionnalité de ce nombre de photons à l'énergie cédée au gaz par la particule nucléaire le traversant, quelle que soit la perte spécifique d'énergie de celle-ci.

La plupart de ces photons étant émis dans le domaine ultra-violet du spectre on doit utiliser une optique de quartz ou de fluorine, ou utiliser un convertisseur de lumière capable d'absorber les radiations de courtes longueurs d'onde et de réémettre dans la région du maximum de sensibilité des photomultiplicateurs conventionnels.

## 2-2. PROBLEMES POSES - MESURES EFFECTUEES.

Compte-tenu de ce qui précède, les différents aspects de la fluorescence des gaz qu'il nous a paru nécessaire d'étudier sont :

1/ Le spectre d'émission après excitation par les particules nucléaires de façon à définir les niveaux d'excitation les plus probables et les longueurs d'onde des raies émises. La participation des impuretés à l'émission lumineuse peut être analysée par leur émission spectrale.

2/ Les durées de vies des états excités et les possibilités de diminution de ces durées de vie. La connaissance du spectre des raies émises permettra si cela est nécessaire de choisir la région du spectre qui correspond aux temps d'émission les plus courts.

3/ Les rendements de conversion de l'énergie en photons de façon à vérifier l'absence de saturation de l'intensité spécifique de la fluorescence en fonction de la perte d'énergie spécifique.

Un bref rappel des principaux faits connus concernant les probabilités d'excitation, la durée de vie des états excités et les transferts d'énergie est donc nécessaire : il fait l'objet du chapitre III.

Dans le chapitre IV les méthodes expérimentales utilisées pour l'étude de la luminescence des gaz sont décrites ; les résultats concernant les spectres d'émission et les durées de vie des atomes sont exposés.

-----

(\*) Rapport entre l'énergie transportée par les photons émis et l'énergie totale perdue par unité de longueur de la trajectoire d'une particule.

Dans le chapitre V on étudie les caractéristiques des gaz rares considérés comme scintillateurs pour la détection des particules nucléaires.

Enfin quelques applications intéressantes des scintillateurs gazeux pour les expériences de physique nucléaire sont analysées dans le chapitre VI. On décrit en particulier un nouveau détecteur de neutrons à faible temps de résolution ( $10^{-9}$  s) et qui est très peu sensible aux rayons  $\gamma$ .

### III

## DONNÉES THÉORIQUES ET EXPÉRIMENTALES

Lorsqu'une particule nucléaire traverse un gaz, deux types de collisions peuvent avoir lieu : élastiques et inélastiques. Nous ne nous intéressons ici qu'au deuxième type dans lequel de l'énergie est échangée entre le mouvement de translation et les mouvements de vibration et de rotation des particules. Ces collisions font intervenir des électrons, des atomes rapides excités ou ionisés, des photons ; aussi les phénomènes élémentaires possibles sont-ils extrêmement nombreux ; on a résumé les principaux cas dans le tableau I.

Tableau I  
Principaux types de collisions inélastiques dans un gaz

| Particule incidente  | Nature de la collision                                                                                                   | Représentation symbolique                                                                                                                                                                               | Exemple de phénomène physique           |
|----------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------|
| Photons              | Excitation<br>Photoionisation                                                                                            | $A + h\nu \rightarrow A'$<br>$A + h\nu \rightarrow A^+ + e$                                                                                                                                             | absorption des radiations de résonance. |
| Electrons            | Recombinaison radiative<br>Excitation<br>Ionisation<br>Choc de 2ème espèce<br>Attachement<br>Détachement photoélectrique | $A^+ + e \rightarrow A + h\nu$<br>$A + e \rightarrow A' + e$<br>$A + e \rightarrow A^+ + e + e$<br>$A' + e \rightarrow A + \bar{e}$<br>$A + e \rightarrow A^- + h\nu$<br>$A^- + h\nu \rightarrow A + e$ |                                         |
| Particules atomiques | Echange de charge { capture<br>perte<br>Excitation<br>Ionisation                                                         | $\bar{A}^+ + B \rightarrow \bar{A} + \bar{B}^+$<br>$\bar{A}^+ + B \rightarrow \bar{A}^{++} + B + e$<br>$A^+ + B \rightarrow A^+ + B'$<br>$A^+ + B \rightarrow A^+ + B^+ + e$                            |                                         |
|                      | Choc de 2ème espèce                                                                                                      | $\bar{A}' + B \rightarrow A + B'$<br>$A' + B \rightarrow A + \bar{B}$<br>$A' + B \rightarrow A + B^+ + e$                                                                                               | sensibilisation de la fluorescence      |
|                      | Excitation par atome rapide<br>Ionisation par atome rapide                                                               | $\bar{A} + B \rightarrow A + B' \text{ ou } A' + B$<br>$\bar{A} + B \rightarrow A + B^+ + e$<br>ou $A^+ + B + e$                                                                                        |                                         |

A est un atome ou une molécule neutre dans l'état fondamental  
 $A'$  " " " " un état excité  
 $A^+$  " " " ionisé

Ces symboles surlignés représentent les particules précédentes animées d'un mouvement rapide.

### 3-1. CAS DES GAZ MONOATOMIQUES PURS.

On sait que les états d'énergie possibles d'un atome forment une suite infinie de valeurs discrètes bornées supérieurement et inférieurement ; l'origine de l'échelle des énergies est choisie de telle sorte que l'énergie totale de l'électron qui échappe à l'atome (limite supérieure de la suite montrée sur la figure 2) soit nulle. On appelle excitation tout phénomène qui modifie l'état d'énergie fondamental de l'atome. Si  $E_i$  est l'énergie de première ionisation, l'électron le moins lié à l'état fondamental a l'énergie  $-E_i$  et il est susceptible dans certaines conditions de passer à un état d'énergie  $(-E_i + E_e)$  supérieure à  $-E_i$  mais encore négative et quantifiée : dans ce cas l'atome est dit excité.

Nous avons vu que les propriétés de ces niveaux excités qu'il est nécessaire d'étudier particulièrement sont :

- les sections efficaces d'excitation en fonction de la nature et de l'énergie de la particule incidente.
- les durées de vie des électrons sur ces niveaux.

#### 3-1-1. Sections efficaces des collisions inélastiques des atomes par les particules nucléaires.

La connaissance de ces sections efficaces permettrait de calculer les spectres d'excitation des atomes et par conséquent le rendement de luminescence d'un gaz déterminé en fonction de la nature de la particule incidente.

Malheureusement les données théoriques sont encore très fragmentaires, les calculs n'étant possibles, dans le cas des gaz rares, que pour l'hélium excité par des électrons ou des protons.

Les considérations générales déduites par Massey [31] de ses travaux et de ceux d'autres auteurs sont les suivantes :

1/ La section efficace de collision passe par un maximum pour une énergie donnée de la particule incidente ; si  $v$  est la vitesse relative correspondant à ce maximum, et si  $\Delta E$  est le changement d'énergie interne de l'atome-cible au cours de la transition, ce maximum de section efficace a lieu quand le temps de collision est voisin du temps  $\tau$ , tel que :  $\frac{h}{\tau} = \Delta E$ .

Si  $a$  est la distance d'interaction des deux particules cette condition s'écrit :

$$\frac{v}{a} \cdot \frac{h}{\Delta E} \approx 1$$

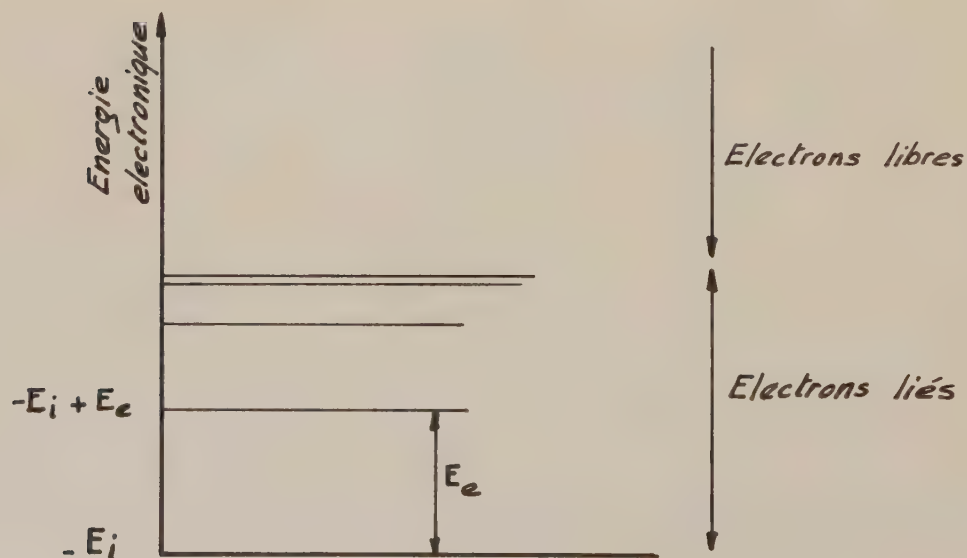


Figure 2 - Niveaux d'énergie électroniques.

L'expérience montre que  $a$  peut être pris égal à la demi-somme des rayons des atomes définis en théorie cinétique des gaz.

Les valeurs des maxima de section efficace sont comprises entre  $10^{-19}$  et  $10^{-15}$   $\text{cm}^2$  suivant la nature des particules envisagées. Quelques résultats typiques sont réunis ci-dessous.

| Cible | Particule    | Energie<br>eV | Etat excité                | Section efficace<br>$\times 10^{-16} \text{ cm}^2$ |
|-------|--------------|---------------|----------------------------|----------------------------------------------------|
| He    | e            | 50            | $2^1\text{S}$              | 0,04                                               |
| He    | e            | 40            | $2^3\text{S}$ (métastable) | 0,4                                                |
| He    | $\text{H}^+$ | $10^5$        | $1^1\text{P}$              | 0,004                                              |

Ceci représente les valeurs calculées en supposant que la perturbation de l'onde incidente par le champ atomique est faible (approximation de Born).

Il résulte de la présence de ce maximum de section efficace qu'au cours du ralentissement d'une particule nucléaire dans un gaz, le spectre lumineux émis se modifie puisque les niveaux d'excitation préférentiels seront de plus en plus bas dans l'échelle des énergies.

Pour des particules nucléaires de nature différente mais de vitesse égale les niveaux d'excitation préférentiels seront les mêmes si les distances d'interaction sont du même ordre de grandeur, les spectres obtenus seront donc identiques. C'est bien ce qui a été montré expérimentalement par C. Y. Fan [8] par exemple, dans le cas de l'excitation de l'azote par des électrons et des protons.

2/ A des énergies très supérieures au seuil d'excitation, la section efficace décroît avec l'énergie de la particule incidente  $E$  comme  $E^{-1} \log E$  pour les transitions optiques permises. Pour les transitions interdites la section efficace décroît comme  $E^{-1}$  (figure 3) en général.

La figure 4 donne la valeur de la section efficace d'ionisation des gaz rares par les électrons en fonction de l'énergie de ceux-ci.

Dans le cas des collisions où la particule incidente n'est pas un électron, un processus particulièrement important est l'échange de charge. Il est symbolisé par :  $A^+ + B \rightarrow A + B^+$  et a lieu sans échange de quantité de mouvement.

La section efficace de ce phénomène dépend de la vitesse des particules et de leur état de charge. L'ordre de grandeur des sections efficaces est  $10^{-16} \text{ cm}^2$  ; il y correspond à la pression atmosphérique des libres parcours moyens très petits [42] :

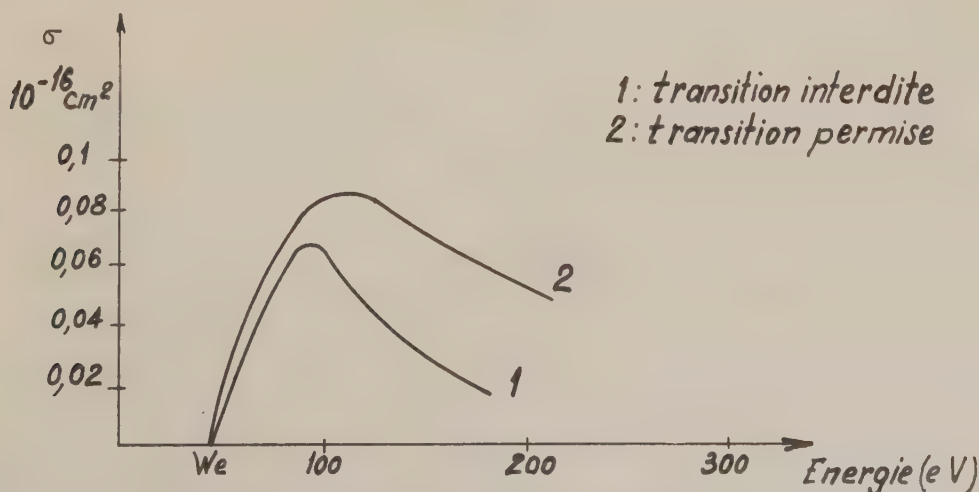


Figure 3 - Allure de la section efficace d'excitation atomique par les électrons.

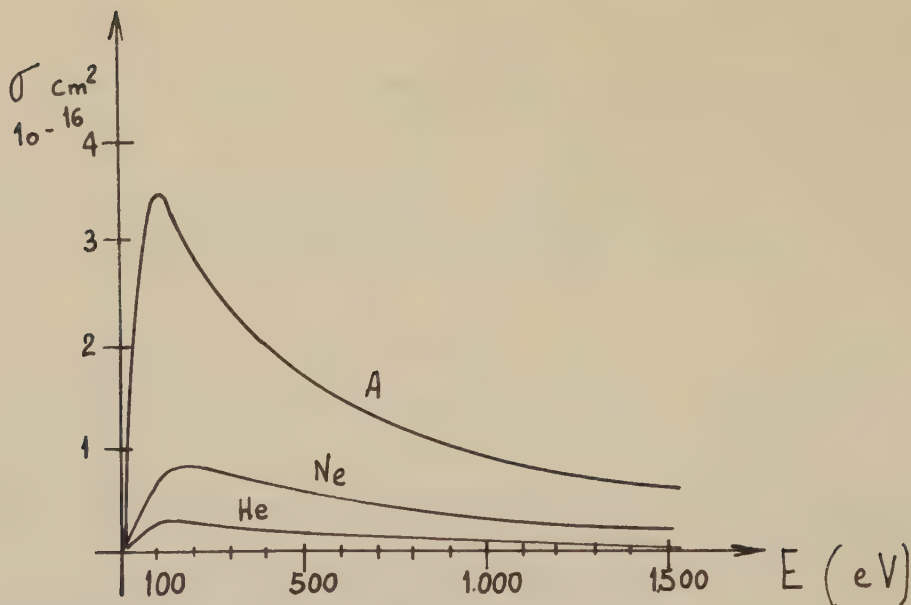


Figure 4 - Ionisation des gaz rares par les électrons.

$$\bar{l} = \frac{1}{L \sigma} = \frac{1}{2,69 \cdot 10^{19} \cdot 10^{-16}} = 3,7 \cdot 10^{-4} \text{ cm} \quad (12)$$

$L$  est le nombre d'atomes par  $\text{cm}^3$  d'un gaz dans les conditions normales.

Compte-tenu de l'ordre de grandeur des vitesses thermiques :  $10^5 \text{ cm/s}$  dans le cas de l'hélium à la température ordinaire, le temps moyen nécessaire à cet échange de charge est :

$$t = \frac{\bar{l}}{v} = 3,7 \cdot 10^{-9} \text{ s.}$$

On doit donc voir apparaître le spectre d'excitation des atomes provenant de la neutralisation des particules incidentes si le flux de celles-ci est suffisant.

### 3-1-2. Durées de vie des états excités.

Parmi les différents niveaux d'excitation possibles, on distingue :

1/ Les niveaux optiques : l'atome revient à l'état fondamental par émission successive de plusieurs photons d'énergie  $h\nu = E_0$  au bout d'un temps très faible, de l'ordre de  $10^{-8} \text{ s}$  ou moins. La probabilité d'une transition par unité de temps ou coefficient d'Einstein  $A$ , varie comme  $\lambda^{-3}$  où  $\lambda$  est la longueur d'onde de la radiation émise, celle-ci étant liée à l'écart d'énergie correspondant par l'égalité  $\lambda \Delta E = 12\,340 \text{ (\AA, eV)}$  [33].

Dans le cas de l'hélium, les durées de vie d'un certain nombre de niveaux ont pu être calculées [34] et mesurées [35]. Les résultats sont rassemblés dans le tableau II. La méthode de mesure utilisée est celle des coïncidences retardées, son principe est exposé dans le paragraphe 4-4-2.

Tableau II

Durées de vies de quelques niveaux excités de l'hélium

| Niveau                          | $3^1\text{P}$<br>(2 S - 3 P seul :<br>$\lambda = 5016 \text{ \AA}$ ) | $4^3\text{S}$ | $3^3\text{P}$  | $4^3\text{P}$  | $3^3\text{D}$ |
|---------------------------------|----------------------------------------------------------------------|---------------|----------------|----------------|---------------|
| Théorie $10^{-8} \text{ s.}$    | 7,47                                                                 | 6,4           | 9,7            | 13,8           | 1,39          |
| Expérience $10^{-8} \text{ s.}$ | $7,4 \pm 0,1$                                                        | $6,7 \pm 0,1$ | $11,5 \pm 0,5$ | $15,3 \pm 0,2$ | $1 \pm 0,5$   |

Le diagramme d'excitation de l'hélium est représenté sur la figure 5.

2/ Les niveaux de résonance : pour lesquels l'électron excité est susceptible de retourner directement à l'état fondamental, sans passer par des états d'excitation intermédiaires. Des estimations théoriques de leur durée de vie, dans le cas de l'hélium par exemple, donnent une valeur de  $4,4 \cdot 10^{-10}$  s pour la transition  $1^1S, 2^1P$  (584 Å) [36].

Cette durée de vie est celle de l'atome isolé ; dès que d'autres atomes sont présents, la radiation de résonance est réabsorbée et réémise un grand nombre de fois avec formation consécutive du même état excité : c'est le phénomène d'emprisonnement de la radiation de résonance. D'après Holstein [37], si  $N_0$  atomes sont excités sur un niveau de résonance, le nombre d'atomes restant excités un temps  $t$  après est donné par :

$$N = N_0 e^{-gAt} \quad (1)$$

où  $A$  est la probabilité par unité de temps d'émission de la radiation de résonance pour un atome isolé. Le coefficient d'Einstein  $A$ , est l'inverse de la durée de vie de l'état excité quand la pression tend vers zéro ; il peut être calculé théoriquement dans certains cas simples et on peut le déduire de la mesure du coefficient d'absorption du gaz pour la radiation considérée. Le facteur d'emprisonnement  $g$ , inférieur à 1, dépend de la géométrie du récipient, de la densité  $n$  du gaz et de la forme de la raie de résonance.

Pour  $n \leq 10^{15}$  atomes par  $\text{cm}^3$  la forme des raies de résonance est déterminée par l'effet Doppler et on a dans le cas d'un récipient cylindrique :

$$\frac{1}{g} = \frac{5}{8} k_0 R (\pi \log k_0 R)^{1/2} \quad (2)$$

où  $R$  est le rayon du cylindre ;

$k_0$  est le coefficient d'absorption pour le centre de la raie, on a :

$$k_0 = C \frac{n \lambda^3}{v_0}$$

où  $v_0 = \left( \frac{2KT}{M} \right)^{1/2}$  est la vitesse la plus probable de l'atome.

On trouve par exemple des temps d'emprisonnement de l'ordre de  $10^{-4}$  s pour un cylindre de quelques cm de diamètre rempli de vapeur de mercure à la pression de  $5 \cdot 10^{-2}$  mm, dans le cas de la transition  $6^1S, 6^3P$  dont la durée de vie "naturelle" est :

$$\frac{1}{A_{2537}} = 10^{-7} \text{ s.}$$

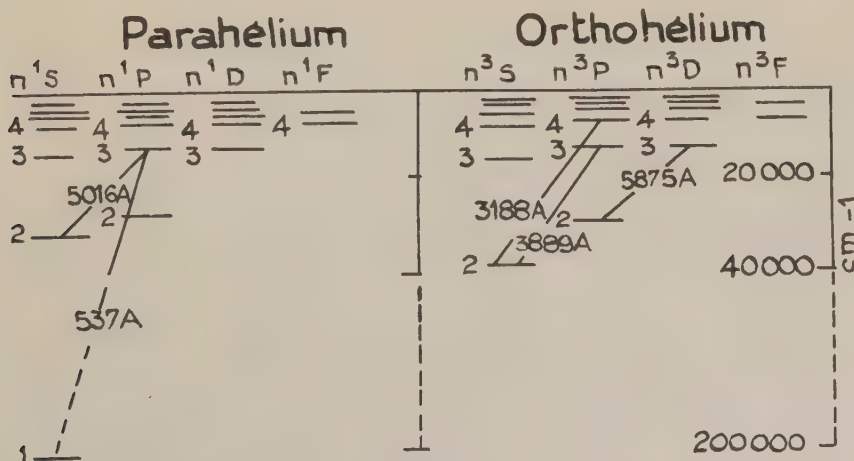


Figure 5 - Diagramme d'excitation de l'hélium.

Pour  $n > 10^{15}$  atomes par  $\text{cm}^3$ , la largeur des raies émises augmente par suite des collisions (effet Holtsmark) et par conséquent la probabilité de réabsorption diminue. Le temps d'emprisonnement passe donc par un maximum pour une pression donnée, une fraction de mm dans le cas du mercure, mais les données précises manquent dans le domaine des pressions élevées (Figure 6).

Dans le cas des gaz rares les longueurs d'ondes correspondantes sont situées dans l'ultra-violet lointain : voir tableau III. La durée de vie des états de résonance peut cependant intervenir lorsque le même niveau se désexcite en émettant deux radiations dont l'une est dans le domaine visible, l'autre étant une radiation de résonance.

Tableau III  
Energies (en eV) de quelques niveaux remarquables  
pour les gaz rares

|                       | He    |        | Ne    | A     | Kr   | Xe   |
|-----------------------|-------|--------|-------|-------|------|------|
|                       | para. | ortho. |       |       |      |      |
| 1er niveau métastable | 20,7  | 19,7   | 16,50 | 11,5  | 9,9  | 8,2  |
| 1er " résonance       |       | 21,1   | 16,55 | 11,59 | 10,0 | 8,4  |
| 2ème " métastable     |       |        | 16,60 | 11,61 | 10,5 | 9,41 |
| 1er " ionisation      | 24,46 |        | 21,5  | 15,7  | 13,9 | 12,1 |
| Raie de résonance Å   | 502   | 584    | 745   | 1063  | 1175 | 1460 |

3/ Les niveaux métastables : pour lesquels tout passage à un état d'excitation moindre (et à l'état fondamental en particulier) est interdit par les règles de sélection quantiques. Leur durée de vie n'est limitée que par les collisions avec un ou deux atomes neutres ou excités (y compris les parois du récipient) ; elle dépendra donc beaucoup de la pression et de la température du gaz. Les coefficients qui in-

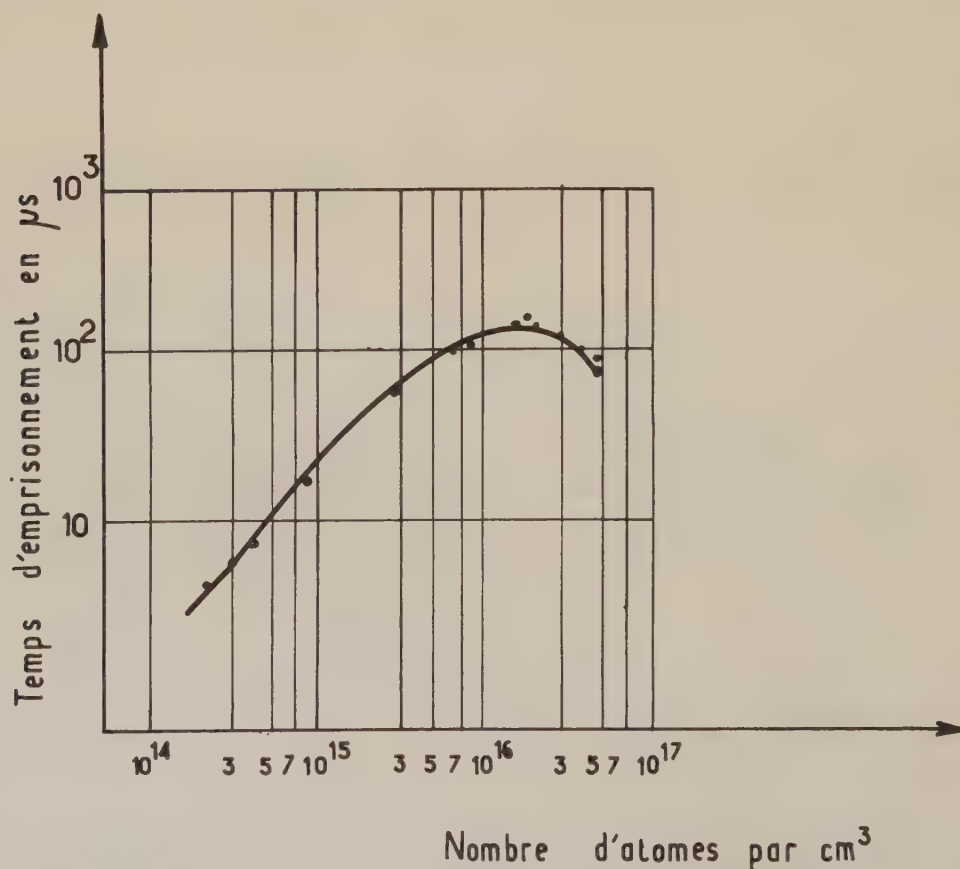


Figure 6 - Temps d'emprisonnement de la raie de résonance du mercure en fonction de la concentration de la vapeur de mercure.  
D'après T. Holstein.

terviennent dans les différents processus de destruction ne sont calculables que dans le cas de la diffusion des atomes métastables d'hélium dans l'hélium [36]. Dans tous les autres cas, on pourra les atteindre expérimentalement par l'étude de la variation avec le temps de la concentration des métastables et de la variation de cette constante de temps avec la pression et la température [38] à [41].

L'équation qui régit la destruction des atomes métastables est de la forme :

$$\frac{\partial M}{\partial t} = \frac{D_0}{p} \nabla^2 M - A p M - B p^2 M - \alpha M^2 \quad (3)$$

M : est la concentration en métastables,

$D_0$  : est leur coefficient de diffusion à la pression de 1 mm de mercure,

p : est la pression en mm de mercure,

A : est la fréquence de destruction par collisions doubles à 1 mm de mercure,

B : est la fréquence de destruction par collisions triples à 1 mm de mercure,

$\alpha$  : est la fréquence d'ionisation résultant de la collision entre 2 métastables.

Le dernier terme est négligeable aux concentrations faibles de métastables qui nous intéressent ici. En s'en tenant à la partie exponentielle de la décroissance la solution de l'équation (3) a pour constante de temps une valeur  $\tau$  donnée par :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{D_0}{p \Lambda^2} + A p + B p^2 \quad (4)$$

où  $\Lambda$  est la longueur de diffusion ; pour un récipient cylindrique de longueur L est de rayon R elle est donnée par :

$$\Lambda = \left[ \left( \frac{\pi}{L} \right)^2 + \left( \frac{2.4}{R} \right)^2 \right]^{-\frac{1}{2}} \quad (5)$$

Aux très basses pressions le terme de diffusion sera le plus important ; au contraire, aux pressions élevées, le terme de collision triple pourra devenir prépondérant. L'étude de L. Colli [30] dans le cas de l'argon à une pression de 700 mm de mercure a montré que la collision triple  $A^* + A + A \rightarrow A_2^* + A$  avec formation d'une molécule instable excitée pouvait expliquer les résultats expérimentaux.

L'ordre de grandeur des durées de vie des états métastables dans le cas de l'argon à la température de 300°K [30] [39] est donné dans le tableau suivant :

Tableau IV  
Durée de vie des états métastables de l'argon  
à diverses pressions

| p mm Hg         | $10^{-4}$ | 1           | 70          | 760         |
|-----------------|-----------|-------------|-------------|-------------|
| $\tau$ secondes | 20        | $5.10^{-3}$ | $2.10^{-5}$ | $2.10^{-7}$ |

En conclusion, lors de l'excitation d'un gaz rare par une particule nucléaire, on doit s'attendre à une loi de décroissance complexe de la fluorescence en fonction du temps, les durées de vie à la pression atmosphérique pouvant varier entre  $10^{-10}$  et  $10^{-6}$  s, suivant la nature des niveaux excités. Un temps de fluorescence minimum peut être cherché en isolant à l'aide d'un filtre les raies correspondant à la désexcitation des niveaux de plus faibles durées de vie.

### 3-2. CAS DES GAZ POLYATOMIQUES.

Ce qui a été dit précédemment s'applique, mais les processus possibles sont plus nombreux si bien qu'on peut s'attendre à des sections efficaces d'excitation plus faibles. Parmi les niveaux excités de la molécule certains sont stables, d'autres conduisent à la dissociation.

Dans ce qui suit, ces gaz nous intéresseront surtout en tant qu'impuretés pouvant participer à l'émission de radiations après transfert d'énergie. C'est ce que nous allons examiner maintenant.

### 3-3. CAS DES MELANGES DE GAZ.

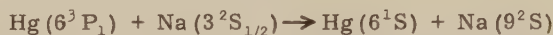
Le rôle du transfert d'énergie entre atomes est alors prépondérant et ceci d'autant plus que la densité gazeuse est plus élevée.

On a vu que pour un gaz à la pression atmosphérique, le libre parcours moyen entre collisions de seconde espèce était voisin de  $4 \cdot 10^{-9}$  cm, la vitesse moyenne des atomes étant  $10^5$  cm/s pour l'hélium à 300°K, le temps moyen au bout duquel un atome sera désexcité par collision est :

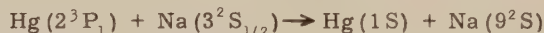
$$\tau = \frac{1}{V} = 4 \cdot 10^{-9} \text{ s}$$

Ce temps est donc plus faible que les durées de vie moyennes des états excités et le transfert est très probable en particulier à partir des niveaux métastables.

A mesure que la densité gazeuse diminuera, ce processus d'échange deviendra moins important, on pourra accepter des taux d'impuretés plus grands. Lorsque le gaz secondaire est une molécule, le transfert d'énergie est très probable car son spectre d'absorption est constitué de bandes : la probabilité de coïncidence entre une raie d'émission du gaz primaire et une bande d'absorption de l'impureté est grande. Le gaz secondaire pourra dissiper l'énergie d'excitation qui lui a été transmise sous forme de lumière, de chaleur ou bien se dissocier. Dans le premier cas, il y a déplacement du spectre d'émission, dans les autres cas il y a extinction. Les expériences classiques sur la sensibilisation de la fluorescence des raies du sodium lorsqu'on excite un mélange de vapeurs de mercure, de sodium et d'argon par la raie de résonance du mercure ont l'intérêt de montrer le rôle des états métastables dans le transfert d'énergie. Le sodium est excité par des collisions telles que :



Par collision avec l'argon des atomes métastables de mercure sont créés, ce qui augmente la probabilité de transfert sur le sodium.



Ces phénomènes peuvent devenir si importants que l'émission de lumière du gaz primaire devient négligeable ; dans ce cas on peut calculer l'intensité lumineuse  $I$  émise par le gaz secondaire en fonction de sa concentration  $c$ , en tenant compte des différents mécanismes possibles :

- extinction dans chacun des gaz par collisions non radiatives ;
- transfert ;
- émission de lumière.

H. Kalmann et M. Furst [43] ont effectué ce calcul pour le cas des liquides organiques scintillants, mais le résultat est absolument général car il ne fait pas intervenir la nature des liaisons entre atomes.

On trouve :

$$I = n \left( \frac{c}{K + c} \right) \left( \frac{1}{K'c + K''} \right) \quad (13)$$

où  $n$  est le nombre d'atomes excités par seconde et par cm.

$K$ ,  $K'$  et  $K''$  dépendent de la probabilité des mécanismes envisagés plus haut.

L'intensité  $I$  passe par un maximum pour une certaine valeur de  $c = f(k, k', k'')$ . Comme  $c$  varie entre 0 et 1, ou bien  $I$  croît constamment, ou bien il passe par un maximum dans cet intervalle.

Les valeurs des probabilités de collision avec transfert ou dégradation de l'énergie ne sont pas connues dans le cas des gaz rares et de leur mélange avec d'autres gaz, aussi est-il impossible de prévoir quantitativement l'action d'une impureté donnée sur la luminescence d'un gaz.

L'étude spectrale de la luminescence des gaz rares excités par des particules nucléaires, en dehors de son intérêt pour la détermination des niveaux d'excitation préférentiels des gaz rares est donc indispensable pour déceler les impuretés dont les probabilités de transfert et de réémission dans une bande de longueur d'onde donnée, sont les plus grandes. C'est ainsi que l'étude systématique des mélanges de gaz rares avec l'azote a pu être entreprise ; nous verrons dans le chapitre suivant que ses résultats confirment la théorie précédente.

## IV

### ÉTUDE EXPÉRIMENTALE – MÉCANISMES FONDAMENTAUX DE LA LUMINESCENCE DES GAZ RARES

#### 4-1

##### DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

###### 4-1-1. Degré de pureté des gaz étudiés.

Nous avons vu l'importance du degré de pureté du gaz étudié si l'on veut rendre l'influence des transferts d'énergie négligeable. Une connaissance quantitative des impuretés présentes est en outre indispensable si l'on veut pouvoir interpréter les faits expérimentaux.

Les gaz utilisés, livrés par la Société l'Air Liquide, étaient "spectroscopiquement purs". Les analyses ont été effectuées d'une part à la Société l'Air Liquide, d'autre part au Service de Chimie du C.E.N. par spectrographie de masse (\*). Ces dernières mesures ont été effectuées sur des ampoules remplies dans les mêmes conditions que les dispositifs d'étude. Les résultats sont réunis dans le tableau V.

Tableau V  
Taux d'impuretés des gaz utilisés.

| Impuretés<br>ppm<br>Gaz                  | He    | A | Kr   | Xe   | N <sub>2</sub> |
|------------------------------------------|-------|---|------|------|----------------|
| Ne                                       | 40    |   |      |      |                |
| A                                        | ≤ 10  |   |      |      |                |
| Kr                                       |       |   |      | 2400 |                |
| Xe                                       |       |   | 3600 |      |                |
| N <sub>2</sub>                           | ≤ 300 | 1 | 100  | 100  |                |
| O <sub>2</sub>                           | ≤ 40  | 2 |      |      | 10             |
| CO<br>CO <sub>2</sub><br>CH <sub>4</sub> |       | 2 | 15   | 15   |                |
| H <sub>2</sub> O                         |       | 2 | 2    | 2    | 2              |

La méthode d'analyse par spectrographie de masse ne permet pas d'obtenir des limites de sensibilité plus petites que les valeurs indiquées sur le tableau V, par suite de la faible quantité de gaz admissible dans l'appareil (1 cm<sup>3</sup>) et de la pression résiduelle non négligeable ; nous verrons que les données expérimentales concernant la luminescence prouvent dans le cas de l'hélium, l'existence d'un degré de pureté bien meilleur, certainement inférieur à quelques p. p. m en ce qui concerne l'azote.

La figure 7 donne un schéma du dispositif de remplissage en pyrex ; on utilise une pompe à vapeur

(\*) Je tiens à remercier MM. Nief et Bourguillot qui ont effectué ces analyses.

de mercure à piège incorporé mise au point au laboratoire [44]. Le vide limite dans l'installation est de  $10^{-6}$  mm de mercure. Les pressions de remplissage sont mesurées d'une part avec un manomètre à mercure (de 1 mm à 760 mm) d'autre part avec un vacustat Edwards (jauge de MacLeod simplifiée) pour les faibles pressions partielles d'un gaz secondaire de  $10^{-3}$  mm à 1 mm de mercure. La précision sur la mesure de la pression est de 30 % pour  $10^{-2}$  mm de mercure et 10 % à partir de  $10^{-1}$  mm de mercure.

On procède au remplissage en faisant traverser au gaz un piège réfrigéré afin de retenir les traces de vapeur d'eau et de gaz carbonique qu'il contient. Le tableau VI donne les températures d'ébullition des différents gaz et les mélanges réfrigérants utilisés (température  $T_R$ ) ;  $T_V$  est la température à laquelle la pression de vapeur des éléments de la première colonne est de 1 mm de mercure.

Tableau VI

| Gaz              | $T_E$ °C | $T_V$ °C | Réfrigérant            | $T_R$ °C |
|------------------|----------|----------|------------------------|----------|
| He               | - 268,9  | - 271,7  | azote liquide          | - 195,8  |
| A                | - 185    | - 218    | alcool + azote liquide | - 117    |
| Kr               | - 152,9  | - 199    | " " "                  | "        |
| Xe               | - 107,1  | - 168    | acétone + " "          | - 95     |
| *N <sub>2</sub>  | - 195,8  | - 226    | alcool + " "           | - 117    |
| *CH <sub>4</sub> | - 161,5  | - 205    |                        |          |
| *CO <sub>2</sub> | - 78,5   | - 134,5  |                        |          |
| *CO              | - 190    | - 222    |                        |          |
| *H <sub>2</sub>  | - 252,8  | - 263,3  |                        |          |
| *O <sub>2</sub>  | - 182,9  | - 219    |                        |          |

(\*) On considère ces gaz comme des impuretés.

Les proportions de CO<sub>2</sub> et de H<sub>2</sub>O sont rendues ainsi inférieures à 1 p.p.m.

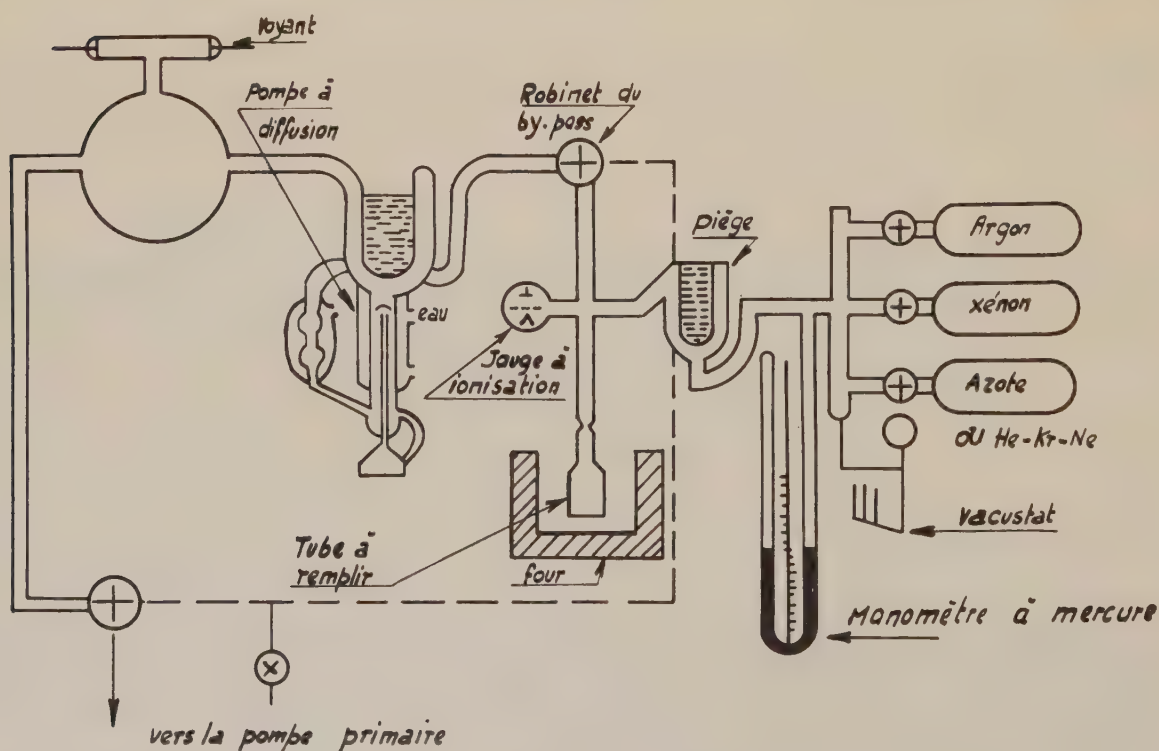


Figure 7 - Schéma de l'installation de remplissage.

#### 4-1-2. Source d'ions de grande énergie.

Toutes les mesures envisagées peuvent se faire avec une source radioactive.

Deux types de sources ont été utilisés :

1/ Des sources planes et minces de rayons  $\alpha$ , en oxyde d'uranium naturel ou enrichi à 46 %, déposé par électrolyse sur de l'aluminium [45]. Elles peuvent être chauffées jusqu'à 500°C, donc être très bien dégazées. On les utilise chaque fois qu'un grand volume de gaz peut être irradié sans inconvénient pour les mesures et quand il est nécessaire que les dispositifs d'étude soient étuvés.

2/ Des sources non étuvables de Polonium ou de Plutonium pouvant être canalisées.

Le tableau VII donne le parcours des rayons  $\alpha$  en cm pour les gaz étudiés dans les conditions normales (76 cm Hg, 0°C).

Tableau VII  
Parcours des rayons  $\alpha$  dans les gaz rares.

| Gaz            | U II     | Po       |
|----------------|----------|----------|
|                | 4,76 MeV | 5,30 MeV |
| He             | 19,3     | 21,5     |
| A              | 3,63     | 4,17     |
| Kr             | 2,53     | 2,82     |
| Xe             | 2,02     | 2,25     |
| N <sub>2</sub> | 3,50     | 3,89     |

#### 4-1-3. Dispositif d'étude - Collection de la lumière.

On doit réaliser un dispositif permettant :

- un étuvage aussi soigné que possible ;

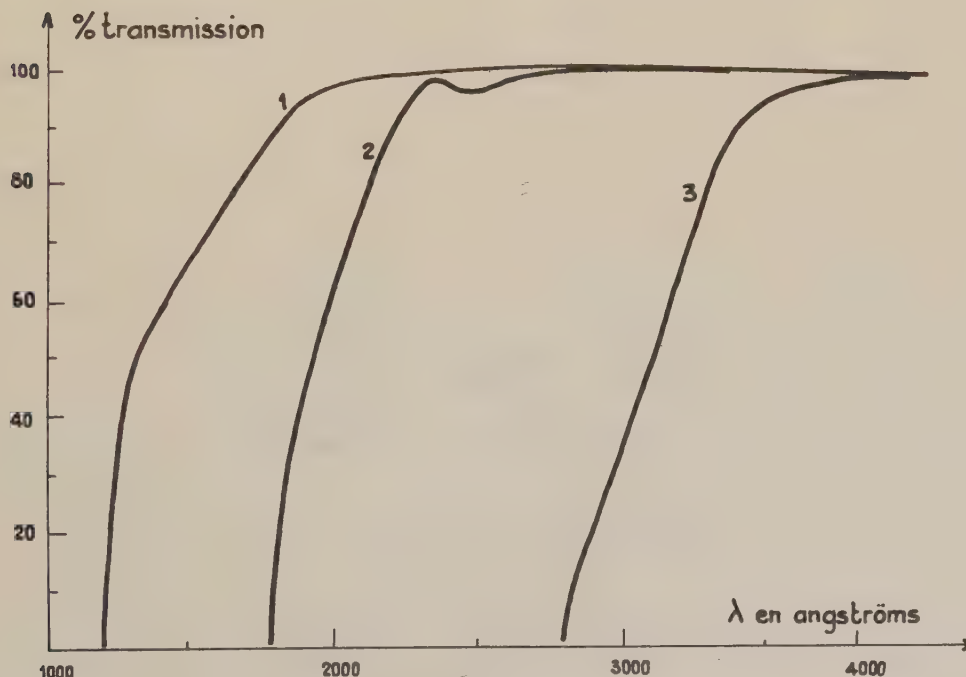


Figure 8 - Courbes de transmission du quartz "Ultrasil", de la fluorine et du verre Pyrex.

- 1 - Transmission dans une lame de 1 mm de Fluorine (Sorem)
- 2 - " " " " de Quartz ultrasil
- 3 - " " " " de Pyrex

- une observation de la luminescence du gaz avec un rendement lumineux élevé, donc une bonne géométrie pour la collection de la lumière et une optique laissant passer une partie du spectre d'émission du gaz aussi large que possible.

Nous avons pour cela utilisé des enceintes en pyrex à fenêtre de quartz ou de fluorine.

Les courbes d'absorption du quartz "Ultrasil" (\*) et de la fluorine (\*\*) sont représentées sur la figure 8.

Le scellement des fenêtres de quartz est effectué soit par un joint au chlorure d'argent (température de fusion:  $450^{\circ}\text{C}$ ), soit avec une chaîne de verres de façon à adapter les coefficients de dilatation (pyrex :  $3,6 \cdot 10^{-6}$ , quartz fondu :  $0,5 \cdot 10^{-6}$ ).

Nous n'avons pas réalisé de dispositif étuvable avec fenêtre de fluorine.

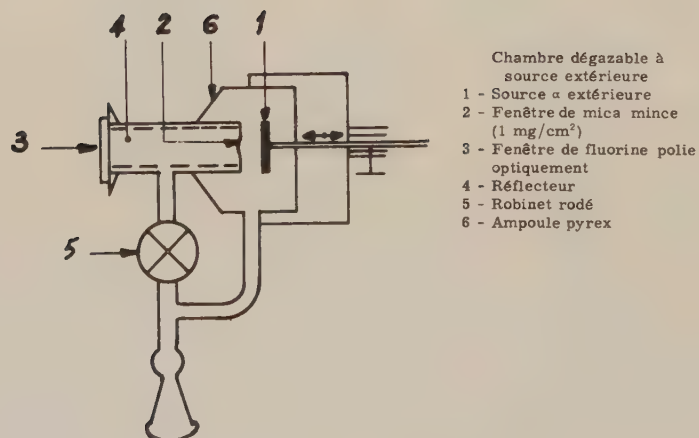
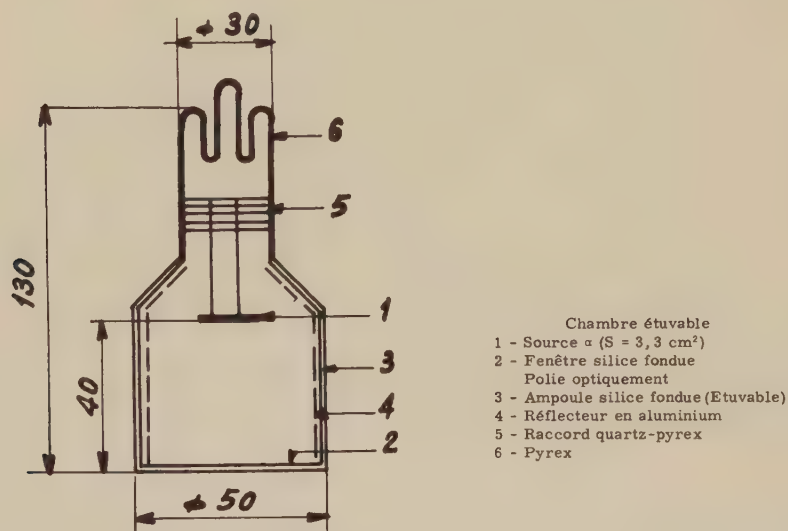


Figure 9 - Chambres pour l'étude de la luminescence.

(\*) Société Quartex.

(\*\*) Société Sorem.

Etant donné la valeur des parcours des rayons  $\alpha$  mentionnés sur le tableau VII, une pression voisine de 760 mm de mercure est commode si l'on veut une bonne géométrie de collection de la lumière émise, après absorption totale de l'énergie des rayons  $\alpha$  dans le gaz - le cas de l'hélium excepté -. Nous avons utilisé en général une pression de 740 mm de mercure. La figure 9 représente les dispositifs réalisés.

Ayant utilisé le plus souvent un photomultiplicateur dont le diamètre extérieur est 50 mm, nous avons choisi un diamètre de tube très voisin. La surface de la photocathode est  $15,4 \text{ cm}^2$ .

Le nombre  $\delta$  d'électrons partant de la photocathode du photomultiplicateur lors du passage d'une particule nucléaire dans le gaz est :

$$\delta = \frac{E_1 A C_{1p} T_p G C}{E} \quad (14)$$

où  $E_1$  est l'énergie de la particule incidente ;

A la fraction d'énergie dissipée dans le gaz ;

$C_{1p}$  l'efficacité de la fluorescence ;

$T_p$  le coefficient de transparence de l'ensemble gaz-fenêtre du tube ;

G le facteur géométrique de collection ;

E l'énergie moyenne des photons ;

C le nombre moyen d'électrons extrait de la photocathode par photon incident.

Le facteur géométrique de collection dépendra beaucoup de la nature des parois du tube. Nous allons examiner le cas des parois réfléchissantes, puis celui des parois diffusantes.

#### 1/ Parois réfléchissantes.

Soit  $r$  le coefficient de réflexion.

Soit  $f$  la fraction de lumière pénétrant sur la photocathode et  $\omega$  l'angle solide moyen.

On a :

$$f = \omega T_p + f(1 - \omega T_p) r T_p \quad (15)$$

$$\text{soit :} \quad f = \frac{\omega T_p}{1 - r T_p (1 - \omega T_p)} \quad (16)$$

Pour  $T_p = 1$ , on a :

$$f = \frac{\omega}{1 - r (1 - \omega)} \quad (17)$$

Dans le cas des tubes de type a (voir figure 9), on a :

$$\omega = \frac{15,4}{4\pi \times (3)^2} = 0,15 \text{ steradian}$$

Le tableau VIII donne les valeurs de  $f$  pour différentes valeurs de  $r$ .

Tableau VIII

|   |     |      |      |      |      |
|---|-----|------|------|------|------|
| r | 0,6 | 0,82 | 0,92 | 0,96 | 0,98 |
| f | 0,3 | 0,5  | 0,7  | 0,8  | 0,9  |

$f$  : fraction de la lumière pénétrant dans le photomultiplicateur en fonction du coefficient de réflexion  $r$  des parois de la cellule contenant le scintillateur.

On voit l'intérêt d'avoir un coefficient de réflexion aussi grand que possible. La figure 10 donne les valeurs de  $r$  dans le cas de l'aluminium et de l'argent obtenus par évaporation thermique [45]. On voit que l'aluminium est préférable lorsqu'on veut un bon coefficient de collection dans l'ultra-violet, à condition d'éviter la formation d'alumine.

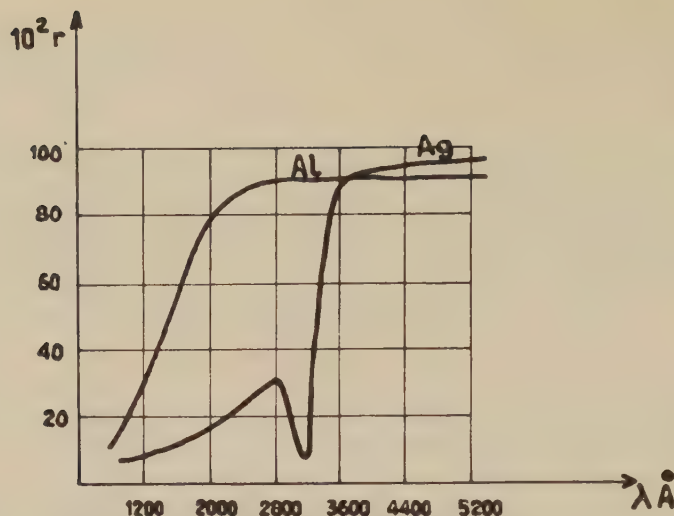


Figure 10 - Coefficients de réflexion en fonction de la longueur d'onde.

## 2/ Parois diffusantes.

Le matériau ayant le coefficient de diffusion le plus élevé dans le visible et l'ultra-violet est l'oxyde de magnésium appliqué en fumée. Le tableau IX indique les valeurs des coefficients de diffusion pour quelques longueurs d'onde.

Tableau IX

Coefficients de diffusion de l'oxyde de magnésium

| λ en Angström              | 2536 | 2967 | 3650 | 4500 |
|----------------------------|------|------|------|------|
| r : MgO appliqué en poudre | 77   | 86   | 87   |      |
| r : MgO appliqué en fumée  | 93   | 93   | 94   | 98   |

Nous avons comparé les valeurs de  $\delta$  obtenues pour différents gaz contenus dans des tubes à fenêtre de quartz recouverts intérieurement d'aluminium évaporé ou de magnésie appliquée en fumée ; aux erreurs expérimentales près, les rendements mesurés sont identiques.

L'angle solide moyen  $\omega$  peut être augmenté en prenant une demi-sphère ou en utilisant deux photomultiplicateurs dont on additionne les signaux.

### 4-1-4. Convertisseur de lumière.

Un grand nombre de raies d'émission des gaz rares se trouvent dans l'ultra-violet. On doit donc s'attendre à ce qu'une partie, - plus ou moins importante, - de la fluorescence ait une longueur d'onde située loin du domaine de sensibilité des photomultiplicateurs conventionnels (Figure 11 A). Or, dans deux cas au moins, il peut paraître nécessaire de convertir la partie ultra-violette du spectre d'émission :

1/ Lorsqu'on veut mettre en évidence et étudier les mécanismes d'interaction conduisant à l'émission de ces raies de courte longueur d'onde.

2/ Lorsque, utilisant le gaz rare comme scintillateur détecteur de particules nucléaires, on désire un rendement de scintillation aussi grand que possible.

Les principaux matériaux utilisés comme convertisseurs de longueur d'onde sont :

- le salicylate de sodium ;
- le tétraphénylbutadiène ;
- le paraquaterphenyl ;
- le diphenyl stilbène.

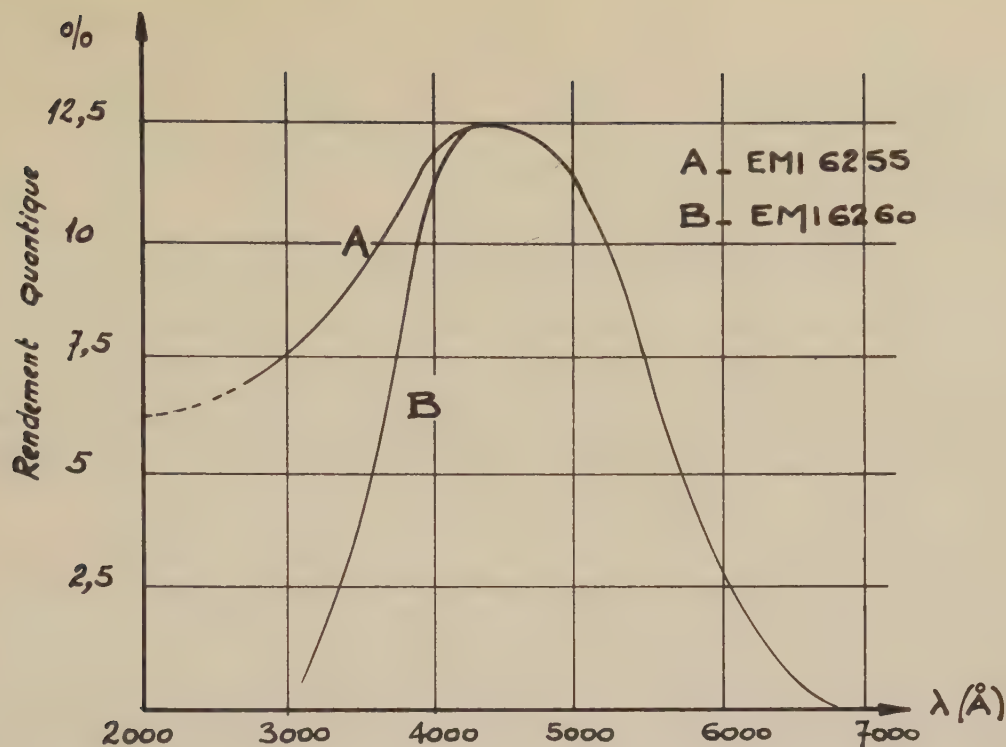


Figure 11 - Sensibilité spectrale des photocathodes.

Sb. - Cs. A : Sur fenêtre de quartz ; B : Sur fenêtre de verre.

Lampe à filament de tungstène  $T = 2854^{\circ}\text{K}$ . Courbes corrigées pour un flux incident égal à toutes les longueurs d'onde; d'après J. Sharpe. British Comm. Electronics Août 1957.

Le salicylate de sodium est utilisé en solution dans l'alcool méthylique. Les trois autres corps peuvent facilement être évaporés sous vide ; ils forment des couches fines et uniformes, stables mécaniquement et optiquement, sauf le tetraphénylbutadiène qui devient opaque si on le laisse à l'air libre.

Les études systématiques effectuées par J. A. Northrop [47] ont montré que le diphenyl stilbène en couche d'environ  $30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  avait le meilleur rendement de conversion des quatre substances précitées, dans le cas des gaz rares excités par rayons  $\alpha$ .

L'énorme inconvénient de ces convertisseurs est leur tension de vapeur importante qui amène une pollution rapide du gaz. Une grande partie de l'énergie absorbée par la vapeur organique est utilisée pour la dissocier ou est réémise sous forme de rayonnement infra-rouge ; par conséquent la luminescence propre du gaz doit disparaître progressivement et c'est bien ce que l'on constate expérimentalement [25]. Par exemple, nous avons réalisé des dépôts de tetraphénylbutadiène (\*) et de diphenyl stilbène (\*) ; dans les deux cas la luminescence de l'argon observée avec une optique de quartz disparaît en quelques heures ; si l'on refroidit le tube à zéro degré C, l'extinction de la luminescence est moins rapide. Donc pour que l'utilisation d'un convertisseur amène un gain dans le nombre de photons utilisables, il est nécessaire de purifier le gaz continuellement. On fait passer ce dernier à travers un absorbant qui peut être constitué de :

- tournures d'alliage de calcium 90 % et magnésium 10 % à  $450^{\circ}\text{C}$  [25].

- tournures de barium à  $450^{\circ}\text{C}$  [48].

- tournures d'uranium à  $800^{\circ}\text{C}$  qui absorbent tous les gaz sauf les gaz rares et l'hydrogène, lequel est absorbé par l'uranium à froid [24].

On peut ainsi obtenir, au prix d'une complication appréciable du dispositif une luminescence stable dans le temps.

-----  
(\*) Pilot Chemicals.

D'autres inconvénients plus fondamentaux sont liés à l'utilisation de convertisseurs de lumière :

1/ Le rendement quantique de conversion en fonction de la longueur d'onde dans l'ultra-violet lointain n'est pas connu sauf dans le cas du salicylate de sodium utilisé par les spectroscopistes. D'après E. Inn[ 49] le rendement quantique serait constant entre 850 Å et 2500 Å.

2/ Le temps  $\theta_0$  de réémission de la lumière par le convertisseur se superpose au temps propre  $\theta$  de désexcitation du gaz rendant impossible toute étude de ce dernier, sauf dans le cas où  $\theta_0 \ll \theta$ .

Or  $\theta_0$  n'est pas connu et est difficilement mesurable.

Donc d'une part, l'utilisation d'un convertisseur de lumière ne permet pas l'étude des mécanismes d'émission, d'autre part, il introduit un taux d'impuretés qui, même s'il est rendu stable, est plus grand que celui obtenu avec une installation étuvable comme celle décrite dans le paragraphe 4-1-1.

Nous avons donc toujours étudié les gaz contenus dans des ampoules scellées ayant une paroi transparente à l'ultra-violet ; la stabilité de la luminescence au point de vue intensité et temps d'émission est alors quasi-infinie. Bien que les rendements de luminescence obtenus dans ce cas soient environ 5 fois plus faibles qu'avec les meilleures installations de purification décrites jusqu'ici les avantages qui en résultent au point de vue de l'étude expérimentale de la luminescence et de son interprétation nous ont paru décisifs.

## 4-2

### ÉTUDE DU SPECTRE D'ÉMISSION DES GAZ PURS

#### 4-2-1. Probabilité d'excitation.

Lorsqu'une particule  $\alpha$  de quelques MeV traverse un gaz, un grand nombre d'électrons est projeté. L'énergie moyenne pour créer une paire d'ions dans l'hélium étant 41 eV, une particule  $\alpha$  de 5 MeV crée  $1,2 \cdot 10^5$  électrons. Le choc pouvant être considéré comme élastique, l'énergie maximum  $W_m$  de l'électron est liée à la vitesse  $V$  de la particule incidente de masse  $M$  par l'équation :

$$W_m = \frac{1}{2} m V^2 = \frac{1}{2} m \left( \frac{2 M}{M + m} V \right)^2$$

Soit :  $W_m = 2 m \cdot V^2 = 2 m c^2 \beta^2$  en négligeant  $m$  devant  $M$ .

Ici on a :  $\beta = 0,05$  et  $W_m = 2,55 \text{ keV}$ .

La distribution des énergies de ces électrons suit la loi :  $\frac{dN}{dW} = \frac{1}{W^2}$  ; un grand nombre d'entre eux ont donc une énergie qui correspond à la région du maximum de section efficace d'excitation. Pour que leur participation au phénomène de luminescence soit négligeable, leur libre parcours moyen doit être supérieur aux dimensions du récipient. Par conséquent, pour mesurer les probabilités d'excitation par les rayons  $\alpha$  d'un niveau donné d'un atome, on doit utiliser une pression très basse de façon à éliminer l'influence des électrons.

Compte-tenu des sections efficaces dont nous avons parlé, la valeur des pressions utilisables est  $10^{-2}$  à  $10^{-3}$  mm de mercure dans le cas de l'hélium ; on conçoit donc qu'il faille un faisceau d'ions très intense, quelques  $\mu\text{A}$  au moins. De telles expériences sont menées actuellement par Fan [50] pour les protons, Sternberg [51] pour les protons et les rayons  $\alpha$ , Slayters [52] pour les ions Cs. Les premiers résultats expérimentaux semblent confirmer que les probabilités d'excitation ne dépendent que de la vitesse des particules nucléaires. De telles mesures ne rentreraient pas dans le cadre de notre travail mais les résultats connus nous permettront d'interpréter certaines de nos expériences.

#### 4-2-2. Enregistrement des spectres excités par un faisceau de particules $\alpha$ .

De tels spectres obtenus par excitation des gaz rares par des rayons  $\alpha$  n'ont pas été publiés jusqu'à présent. Seuls, W. Bennet et al. [53] ont effectué quelques mesures sur l'hélium et sur l'argon avec un spectromètre à prisme de quartz, l'analyseur étant un photomultiplicateur refroidi à la température de l'azote liquide pour lequel la limite de détection est 20 photo-électrons par minute. Mais ils n'ont pu mettre en évidence que les bandes de l'azote - système de  $N_2^+$  dans le cas de l'hélium, système de  $N_2$  dans le cas de l'argon - par suite du degré de pureté insuffisant des gaz utilisés.

Nous avons à notre disposition un spectrographe à prismes de quartz type U. V. 24 fabriqué par la Société Générale d'Optique. L'ouverture relative de l'objectif de chambre est  $F/3,5$ , la dispersion est de  $30 \text{ Å/mm}$  à  $2500 \text{ Å}$  et  $100 \text{ Å/mm}$  à  $4500 \text{ Å}$ .

Le domaine de longueur d'onde exploré s'étend de  $2100$  à  $6000 \text{ Å}$ .

Le gaz étudié est contenu dans des ampoules de pyrex à fenêtre de quartz ou de fluorine (Fig. 9c). La source de polonium de 50 mC, de surface  $7 \text{ mm}^2$  est séparée du gaz par une fenêtre de mica de  $2 \text{ mg/cm}^2$ . Le parcours restant des rayons  $\alpha$  est entièrement contenu dans le gaz, sauf dans le cas de l'hélium. On a donc vérifié que l'ampoule vide ne donnait aucun spectre visible par impact des rayons  $\alpha$  sur le mica ou le quartz. Avec la fluorine on obtient un spectre continu aussi celle-ci n'a-t-elle pas été utilisée pour fermer les ampoules devant contenir de l'hélium. Observée dans l'obscurité, la luminescence du gaz est très nettement visible à l'oeil.

Les enregistrements ont été effectués sur des plaques Guillemot "Superfulgur".

Le schéma du dispositif d'enregistrement est représenté sur la figure 13. Le tube est placé directement contre la fente du spectrographe, sans optique intermédiaire. Pour une largeur de fente de  $1 \text{ mm}$ ,

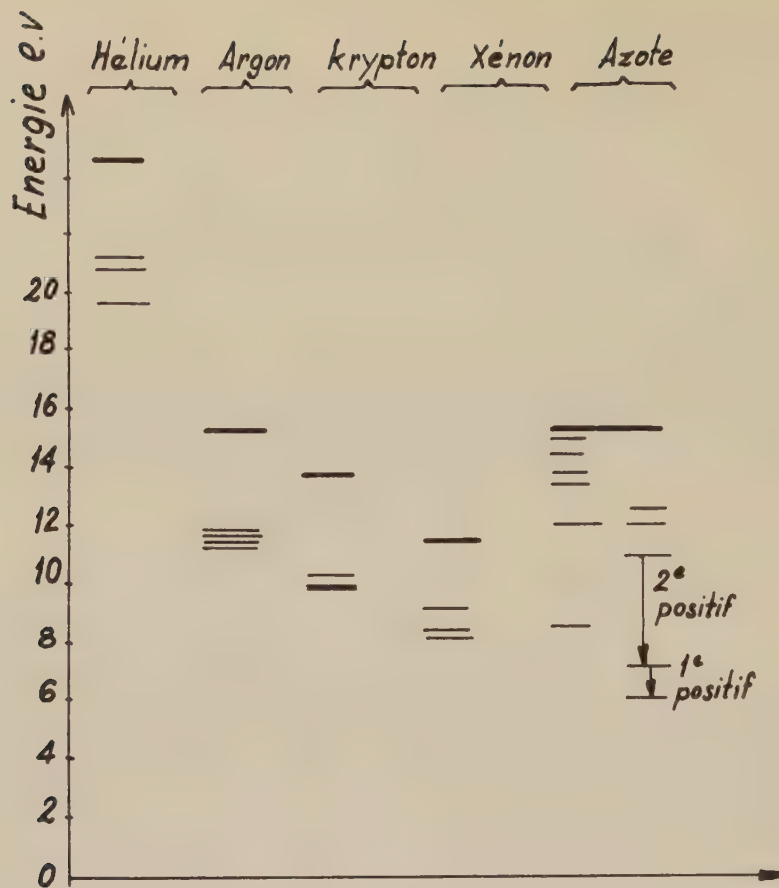


Figure 12 - Niveaux d'excitation inférieurs des atomes de gaz rares et de la molécule d'azote.  
(Le niveau en trait accentué correspond à l'ionisation).

le temps de pose est de 24 heures. Les spectres de référence utilisés sont ceux du fer, du mercure et du cadmium.

Les spectres de l'hélium, de l'argon, du krypton et du xénon ont été enregistrés, figures 14 a et 14 b. On constate que :

1/ Contrairement à ce qui se passe quand on bombarde de l'azote avec un faisceau d'ions accélérés artificiellement [9] et [54], on ne retrouve pas les raies liées à l'atome projectile car les flux intégrés sont plus faibles ; le flux intégré de particules  $\alpha$  est environ  $3 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ , alors que dans l'expérience de Carleton le flux intégré de protons est environ  $10^{18} \text{ cm}^{-2}$ .

2/ Dans tous les cas sauf celui de l'hélium, la raie de résonance du mercure à  $2536 \text{ \AA}$  apparaît. Malgré la présence des pièges à azote liquide supposons qu'on ait une trace de mercure à la température ambiante, sa pression de vapeur est  $2 \cdot 10^{-3} \text{ mm}$ . La concentration du mercure dans les ampoules est donc certainement inférieure à 1 p.p.m. Cette raie est émise par l'atome excité sur le niveau  $2p_2$  d'énergie 4,86 eV au-dessus de l'état fondamental ; nous verrons qu'elle apparaît dans le cas de l'hélium dès que celui-ci contient 10 p.p.m. d'azote.

3/ Dans tous les cas, un certain nombre de bandes de la molécule d'azote neutre et ionisée sont décelables, mais leurs intensités relatives sont différentes de celles obtenues dans le cas d'une décharge haute fréquence. D'autre part, leur aspect est semblable à celui qu'on obtient lors d'une décharge à très basse température (dans l'azote liquide par exemple) : seules les têtes de bande apparaissent et on n'observe aucune structure dans la bande.

La présence de raies du mercure et de l'azote pour des concentrations respectives inférieures à

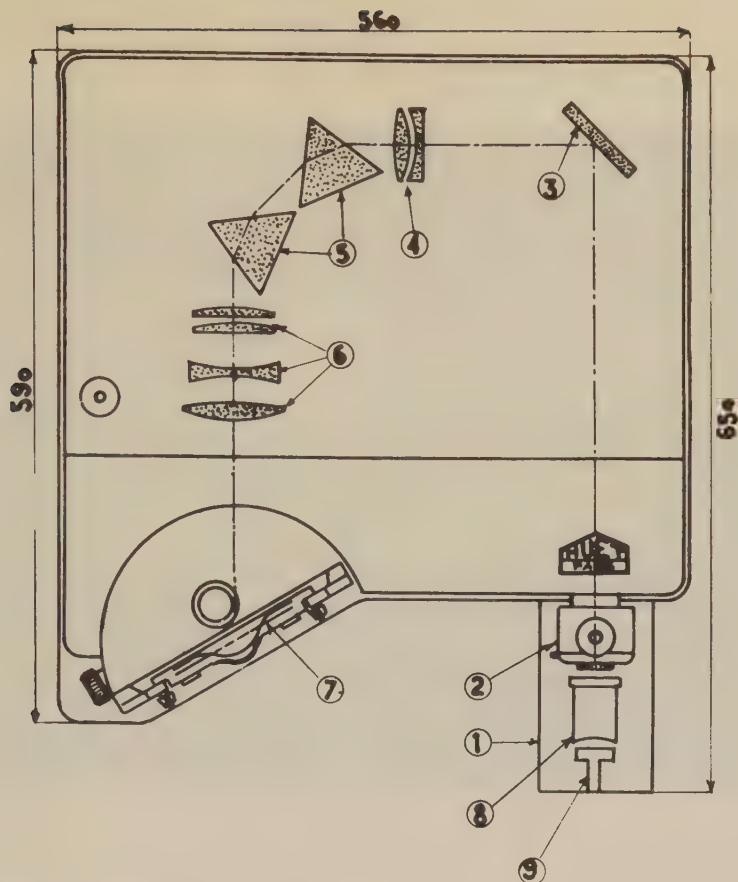


Figure 13 - Enregistrement des spectres de luminescence avec le spectrographe Huet UV 24.

- |                               |                                     |
|-------------------------------|-------------------------------------|
| 1 - Raccord au banc d'optique | 6 - Objectif de chambre             |
| 2 - Fente réglable            | 7 - Plaque photographique           |
| 3 - Miroir                    | 8 - Ampoule contenant le gaz étudié |
| 4 - Objectif de collimateur   | 9 - Source $\alpha$                 |
| 5 - Prismes                   |                                     |

1 p.p.m. et 10 p.p.m. montre la grande probabilité des transferts d'énergie à la pression atmosphérique ; si l'on compare ces résultats à ceux de S. Heron et al. [35] on voit qu'ils n'ont pu mettre en évidence d'autres raies que celles de l'hélium par bombardement électronique du gaz maintenu à la pression de  $5 \cdot 10^{-2}$  mm de mercure et pour un taux d'impuretés de 2000 p.p.m. ; à cette pression un taux d'impuretés de 10 % est nécessaire pour voir apparaître les raies liées au transfert d'énergie.

Les principales raies de gaz rares décelées sont les suivantes :

1/ Hélium 3889 Å ( $2^3S - 3^3P$ )

C'est la raie la plus intense dans le domaine de longueurs d'onde 2100 - 5000 Å comme dans les modes classiques d'excitation.

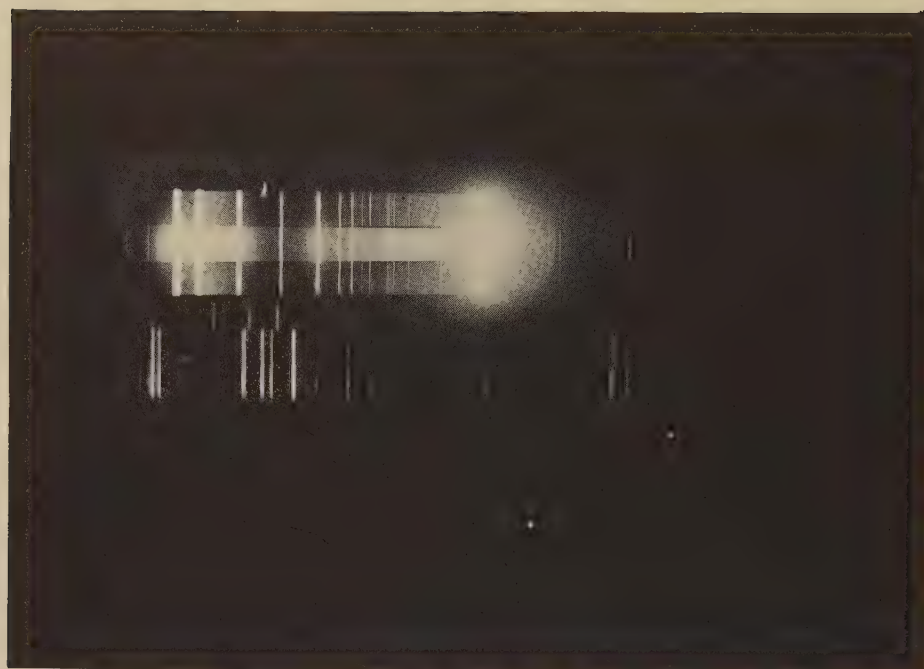
L'état excité  $3^3P$  est un triplet métastable. Il peut être formé directement par choc avec une particule  $\alpha$  ou bien formé par interaction entre un atome excité sur le niveau  $3^1P$  et un atome dans l'état fondamental comme l'ont démontré Maurer et Wolf [55].



La section efficace de ce processus étant  $2 \cdot 10^{-15}$  cm<sup>2</sup>, le libre parcours moyen à la pression atmosphérique de l'atome d'hélium dans l'état  $3^1P$  est :

①

$\lambda$   $\rightarrow$   $2536 \text{ \AA}$   $\downarrow$

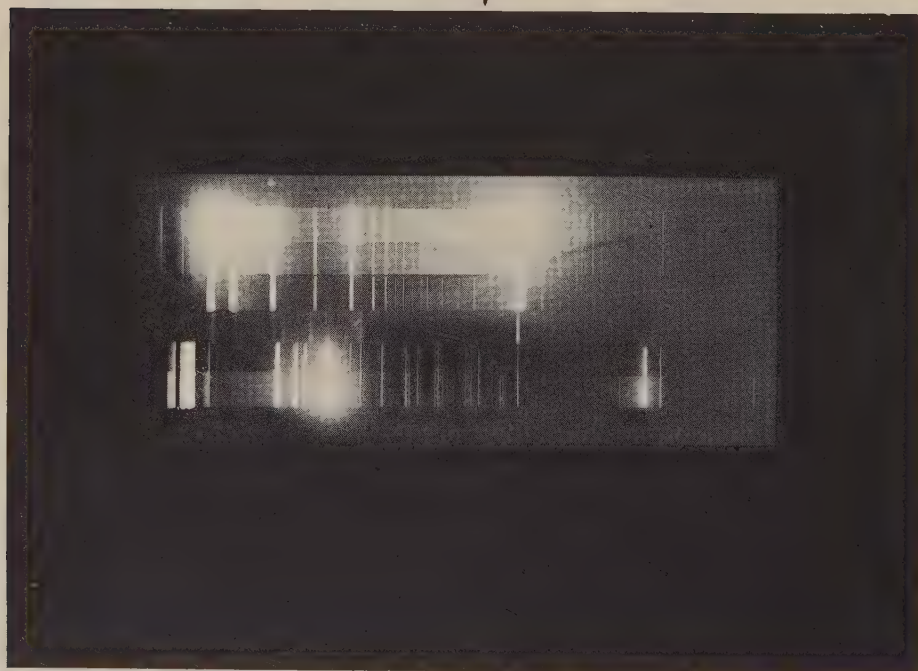


Hg  
Hg  
Hg  
He  
Cd  
Cd

$N_2^+$

$\lambda$   $\rightarrow$   $2536 \text{ \AA}$   $\downarrow$

②



Hg  
Ar  
Cd  
Cd

$N_2$

Figure 14 a - Spectres d'excitation de l'hélium et de l'argon par les rayons  $\alpha$ .

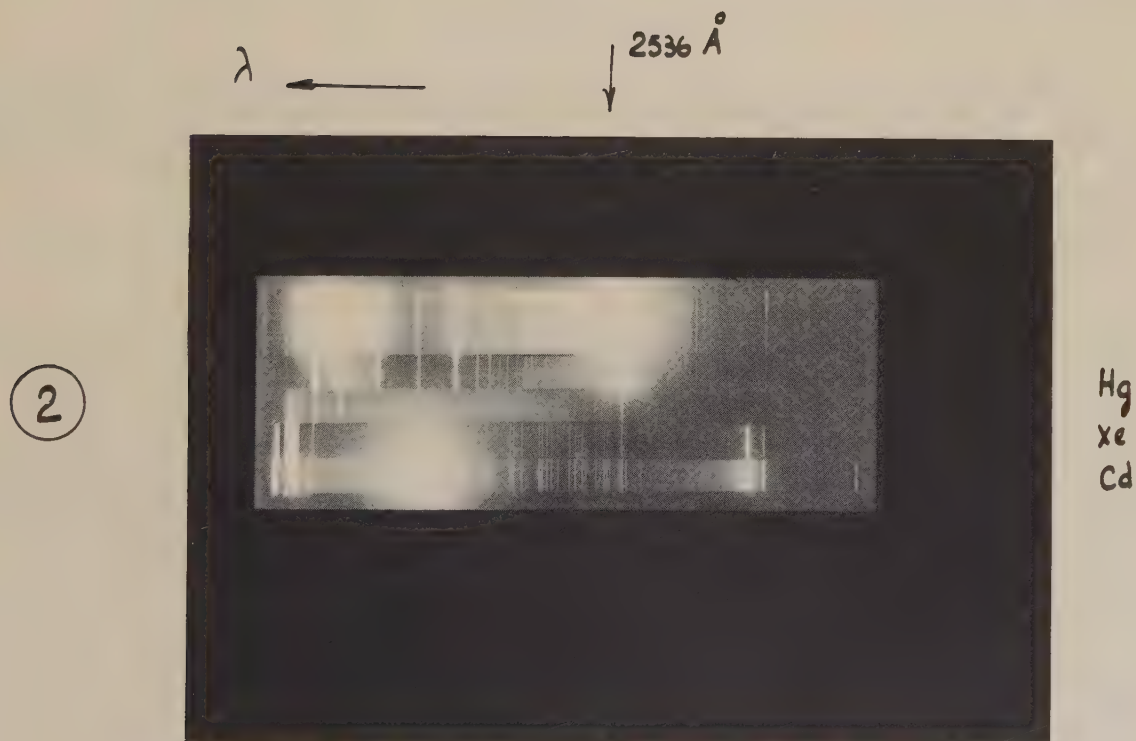
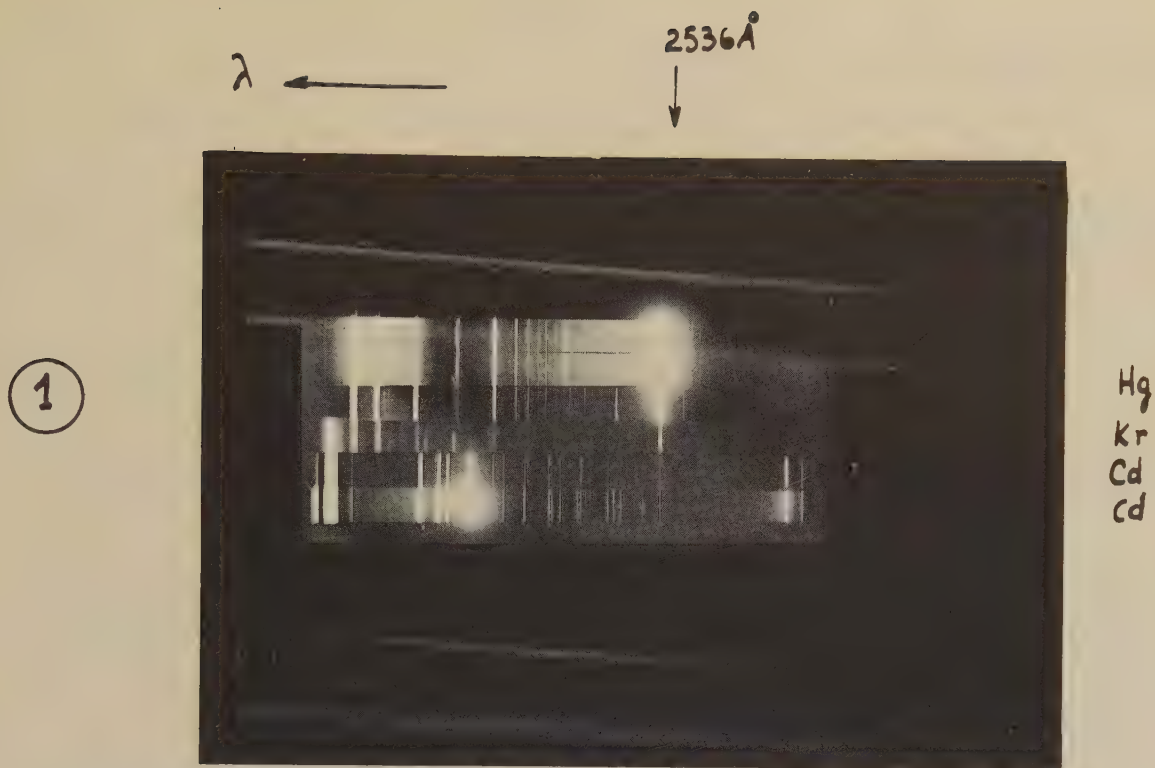


Figure 14 b - Spectres d'excitation du krypton et du xénon par les rayons  $\alpha$ .

$$\bar{I} = \frac{1}{\sigma N} = \frac{1}{2 \cdot 10^{-15} \cdot 2 \cdot 10^{19}} = 0,8 \mu$$

et le temps moyen de la transformation est donc :

$$\bar{t} = \frac{1}{v} = \frac{0,8 \cdot 10^{-4}}{10^5} = 8 \cdot 10^{-10} \text{ s}$$

Or, la durée de vie des atomes excités sur l'état  $3^1 P$  est  $7 \cdot 10^{-8} \text{ s}$  ; donc, à la pression atmosphérique, ces atomes n'auront pas le temps d'émettre la radiation  $\lambda = 5.016 \text{ \AA}$  : ils subiront le transfert sur l'état triplet, c'est donc la durée de vie de cet état que l'on pourra mesurer ; au contraire, pour des pressions telles que le temps moyen entre collisions soit de l'ordre de  $10^{-6} \text{ s}$ , c'est-à-dire pour des pressions inférieures à une fraction de millimètre de mercure, le transfert de l'état singulet à l'état triplet devient très peu probable et la durée de vie mesurée est celle de l'état singulet.

La connaissance des raies émises est donc importante pour interpréter les mesures de constante de temps de décroissance de la luminescence et pour prévoir l'influence de la pression.

L'état  $3^3 P$  peut aussi être formé à partir des niveaux supérieurs par désexcitation en cascades, mais les sections efficaces mesurées par Lees [ 56 ] montrent que le phénomène est négligeable.

Les autres raies décelées sont les suivantes :

- Hélium  $\lambda = 3819 \text{ \AA}$  qui appartient comme la précédente au spectre de l'atome neutre He I ; elle est très peu intense.

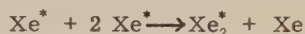
2/ Argon : aucune raie visible dans le spectre de l'atome neutre et raie  $\lambda = 3093 \text{ \AA}$  dans le spectre de l'atome ionisé (A II).

3/ Krypton  $\lambda : 2968 \text{ \AA}$  Kr I

4/ Xénon  $\lambda : 3967 \text{ \AA}$  Xe I

Les autres raies, trop peu intenses n'ont pu être identifiées avec suffisamment de précision.

On observe en outre, un spectre continu très intense dans le cas du xénon dû probablement à la formation de molécules excitées de gaz rare, par exemple au cours d'un choc triple :



En ce qui concerne le mercure, en dehors de la raie de résonance, d'autres raies sont visibles sur tous les spectres sauf celui de l'hélium ; ce sont les raies de longueur d'onde  $\lambda = 4358 \text{ \AA}$  et  $\lambda = 4046 \text{ \AA}$  qui correspondent à une transition depuis l'état  $2 S$  respectivement vers l'état de résonance  $2P2$  et l'état métastable  $2P3$ . La raie  $\lambda = 3650 \text{ \AA}$ , visible seulement dans le cas de l'argon et du krypton, correspond à une transition depuis l'état  $3 d_1$  vers l'état métastable  $2P1$ .

L'intensité de ces raies est beaucoup plus faible que celle de la raie de résonance indiquant que les transferts sur ces niveaux sont beaucoup moins probables.

#### Bandes de la molécule d'azote.

Un certain nombre de bandes sont communes aux divers spectres obtenus : elles appartiennent au spectre de la molécule d'azote neutre et ionisée.

##### 1/ Système de $N_2$ .

Le second système positif est seul visible puisqu'il s'étend de  $2800$  à  $4800 \text{ \AA}$ , le premier système positif qui s'étend de  $5200$  à  $6700 \text{ \AA}$  est au-delà de la limite de sensibilité de la plaque photographique.

Les têtes de bandes principales observées ont des longueurs d'onde de :

- $3159 \text{ \AA}$
- $3371,3 \text{ \AA}$
- $3577 \text{ \AA}$
- $3804,9 \text{ \AA}$

Ce système de bandes est très intense et seul visible dans le cas de l'argon.

##### 2/ Système de $N_2^+$ .

Les principales bandes enregistrées appartiennent au premier système négatif :

- $\lambda = 4278,1 \text{ \AA}$
- $\lambda = 3914 \text{ \AA}$

Ces longueurs d'onde correspondent aux têtes de bandes, la densité optique des bandes diminuant quand  $\lambda$  décroît.

Ce système est particulièrement intense dans le spectre de l'hélium. Dans ce cas pour la bande débutant à 3914 Å, la variation de la densité optique est anormale car la raie 3889 Å de l'hélium se superpose à la dernière partie de la bande par suite de la faible résolution du spectrographe pour une largeur de fente de 1 mm.

#### 4-2-3. Interprétation des résultats.

Dans le domaine de longueur d'onde étudié, seules apparaissent quelques raies appartenant au spectre normal de l'atome neutre et exceptionnellement de l'atome ionisé une fois ; on n'observe aucune raie qui serait caractéristique de l'excitation du gaz par des ions de grande énergie.

Par contre quel que soit le gaz rare, le spectre de la molécule d'azote neutre et ionisée apparaît avec une intensité beaucoup plus grande que le spectre normal du gaz. Parmi toutes les impuretés présentes, en concentration ne dépassant pas  $10^{-4}$ , c'est donc l'azote pour laquelle les sections efficaces de transfert d'énergie et de réémission de radiation sont les plus grandes.

En ce qui concerne l'intensité relative des bandes de  $N_2$  et  $N_2^+$  dans l'hélium et l'argon nos résultats concordent avec ceux de C. S. Wu et peuvent s'expliquer facilement. En effet, l'énergie nécessaire pour ioniser la molécule d'azote et l'exciter sur le niveau correspondant à l'émission du premier système négatif est 18,7 eV. Seul l'hélium a un état métastable d'énergie supérieure : 19,7 eV ; dans ce cas l'ionisation de l'azote peut donc être obtenue par collision avec un atome neutre métastable, dans le cas de l'argon et des autres gaz rares,  $N_2^+$  peut être formé par collisions triples ou par ionisation directe de l'azote par les électrons : mais ces deux processus sont très peu probables étant donné la concentration de l'azote dans le gaz rare.

Quant à l'excitation de la molécule neutre d'azote, elle est énergétiquement possible lors des collisions avec les atomes métastables de gaz rares mais dans le cas de l'hélium l'écart d'énergie considérable entre les niveaux considérés rend ce processus très peu probable (Figure 12).

L'azote joue donc un rôle considérable dans la désexcitation des états métastables des gaz rares : le transfert d'énergie est plus probable sur l'azote que sur les autres atomes du gaz principal (pourtant beaucoup plus nombreux) par suite de l'existence des niveaux quasi continus de l'azote et du fait que la probabilité d'excitation est d'autant plus grande que l'écart d'énergie entre les niveaux correspondants est plus faible. Les niveaux excités et les mécanismes d'excitation sont fondamentalement différents dans le cas de l'hélium et de l'argon d'une part, du krypton et du xénon d'autre part.

Une étude systématique du spectre obtenu en excitant un gaz rare contenant des quantités croissantes d'azote a donc paru intéressante, c'est ce que nous allons examiner maintenant.



## 4-3

### SPECTRES D'ÉMISSION DES MÉLANGES – TRANSFERT D'ÉNERGIE

Nous avons étudié les mélanges hélium-azote et argon-azote avec des proportions d'azote croissantes à partir de 10 p. p. m.

#### 4-3-1. Enregistrement des spectres d'émission des mélanges hélium-azote. (Figure 14 c).

Dans les mêmes conditions que précédemment, on a enregistré les spectres de l'hélium pour des concentrations d'azote de 10 p. p. m. à  $10^4$  p. p. m. Le fait le plus remarquable est l'apparition de la raie de résonance du mercure pour une concentration d'azote de 10 p. p. m. On a effectué la mesure de la densité optique des raies avec un microphotomètre Zeiss du Laboratoire de M. Artaud (\*). La photométrie n'était possible que pour quelques raies suffisamment denses par rapport au fond de la plaque.

Sur la figure 15 sont représentées les variations de la densité optique avec la concentration d'azote. La courbe la plus précise est celle relative à la raie de résonance du mercure ; on voit que la densité croît très vite avec la concentration d'azote.

L'examen de la variation de la densité optique des bandes de l'azote avec sa concentration dans l'hélium fait apparaître deux types de variations très différents.

1/ Les bandes de  $N_2^+$  ont une densité optique qui passe par un maximum pour une concentration d'azote de 200 p. p. m. Ces bandes disparaissent quasi-totalement quand la concentration d'azote passe de  $10^{-3}$  à  $10^{-2}$ .

2/ Les bandes de  $N_2$  à 3371,3 Å et à 3577 Å ont une densité optique qui croît faiblement avec la concentration d'azote.

Nous avons vu au paragraphe 3-3 que l'intensité de la fluorescence d'un mélange passe par un maximum pour une certaine concentration du soluté à la suite du transfert d'énergie du solvant au soluté ; la décroissance de l'intensité de la fluorescence après le maximum est liée aux collisions entre molécules du soluté qui amènent des transitions non radiatives.

Supposons que la section efficace de telles collisions entre molécules d'azote est égale à la section géométrique, soit environ  $10^{-16}$  cm<sup>2</sup>, le temps moyen entre deux collisions pour une concentration d'azote de  $10^{-3}$  est alors  $5 \cdot 10^{-6}$  s.

Comme ce temps est plus long que le temps d'émission de l'azote ce processus de désexcitation par collision est très peu probable. Ce maximum d'intensité pour une concentration aussi faible du soluté peut être relié à l'émission de la raie de résonance du mercure :  $N_2^+$  étant désexcité à la suite du transfert d'énergie sur le mercure. Ce phénomène est une véritable sensibilisation de la fluorescence du mercure en présence d'azote, le transfert direct de l'hélium vers le mercure étant très peu probable.

#### 4-3-2. Enregistrement d'un spectre d'émission du mélange argon-azote. (Figure 14 c).

Un spectre de l'argon pur avec un temps de pose de 93,30 H a été enregistré afin de mettre en évidence les raies de faible intensité de la plaque. Pour le spectre du mélange argon-azote contenant 100 p. p. m. d'azote le temps de pose est de 24 heures, comme pour tous les autres spectres.

On voit que :

1/ Les bandes du système de la molécule neutre d'azote apparaissent seules, les bandes de la molécule ionisée étant pratiquement invisibles comme on l'a vu précédemment.

Ici également un double transfert d'énergie argon-azote et azote-mercure est mis en évidence.

2/ Que la raie de résonance du mercure est fortement renforcée dans le spectre du mélange malgré la différence de temps de pose.

-----  
(\*) Département de Métallurgie et Chimie Appliquée, C.E.N. de Saclay.

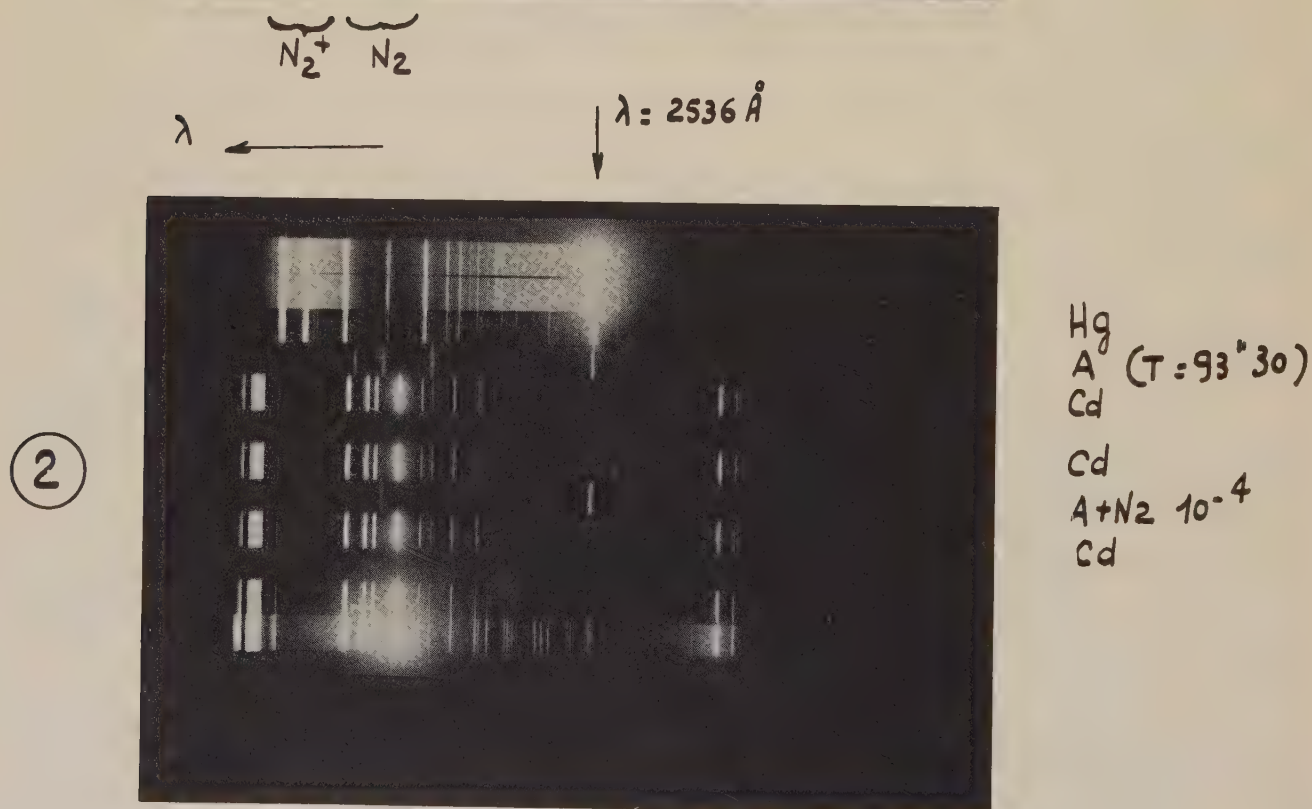
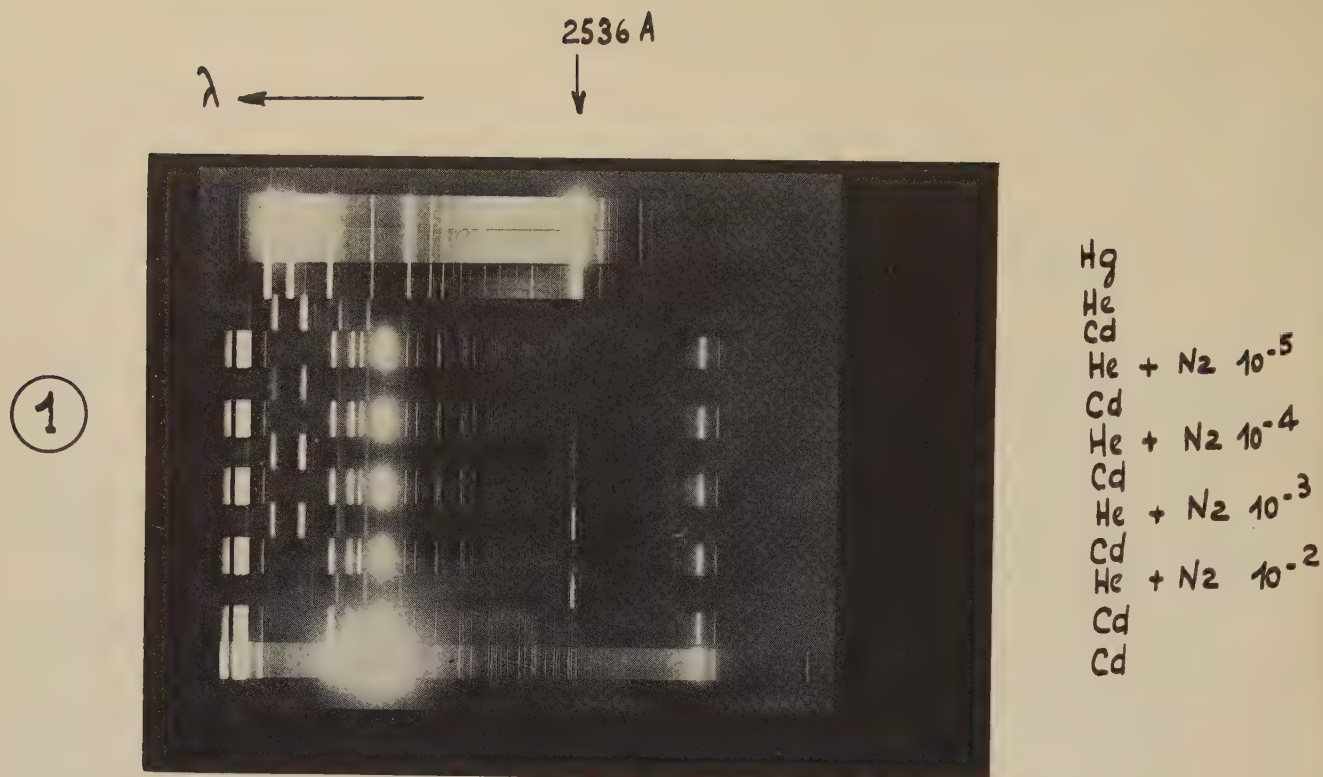


Figure 14 c - Spectres d'excitation des mélanges hélium azote et argon - azote en fonction de la concentration d'azote.

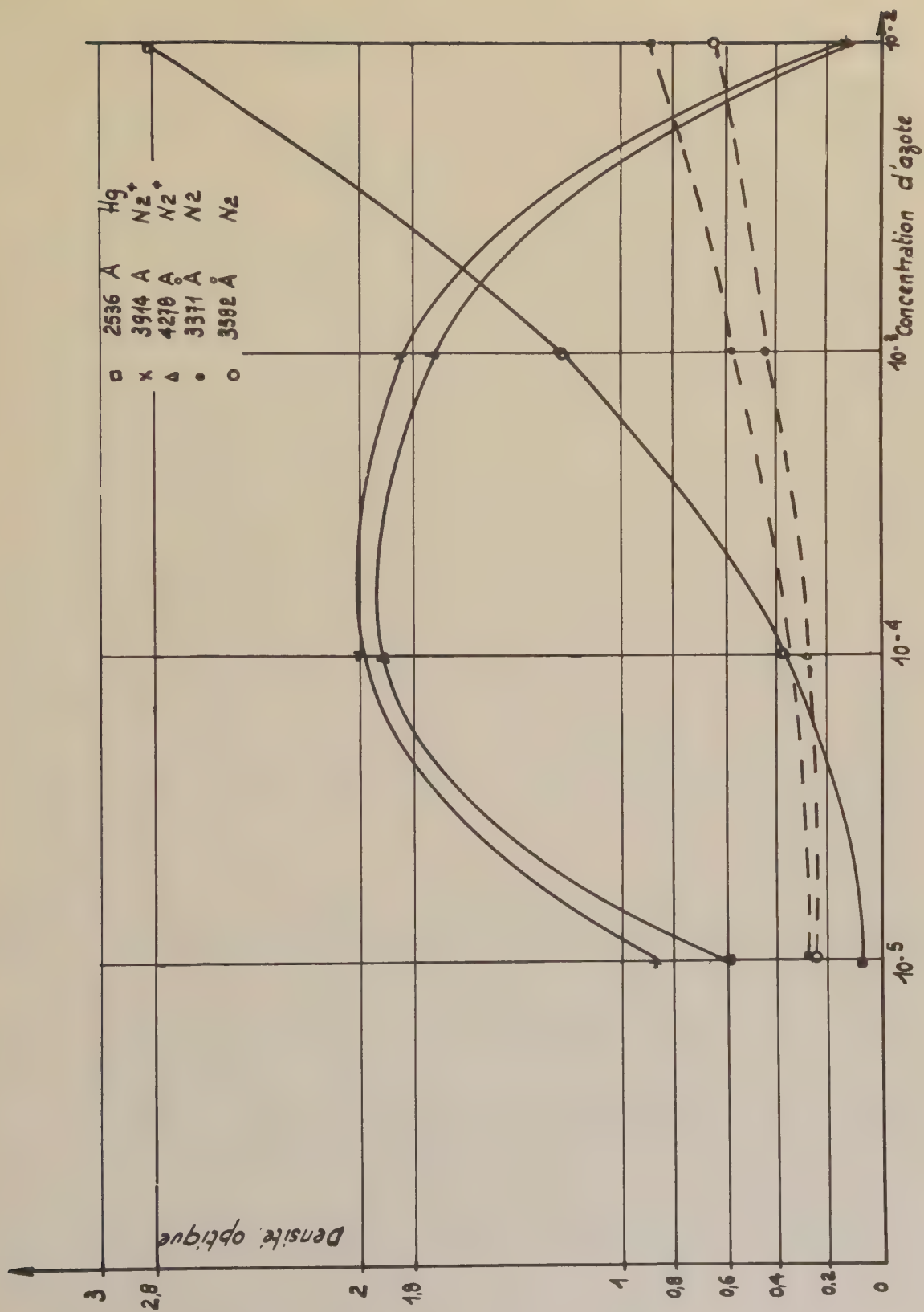


Figure 15 - Densité optique des raies en fonction de la concentration d'azote dans l'hélium.



## 4-4

### DURÉE DE VIE DES ÉTATS EXCITÉS

Nous avons vu dans le paragraphe 3-2-1 que les durées de vie des états excités des atomes variaient énormément avec la nature de l'état excité : un certain nombre de résultats sont connus dans le cas de l'hélium à des pressions telles que les interactions entre atomes soient négligeables ; quand ceci n'est plus vérifié, ce qui est le cas dans nos expériences où la pression est de 740 mm de mercure, les prévisions théoriques sont très difficiles, même dans le cas de l'hélium, et seule l'étude expérimentale peut apporter des résultats sûrs.

Ces mesures ont, de plus, l'intérêt de montrer la proportion de l'énergie émise par les niveaux excités dont les durées de vie sont les plus courtes, ce qui est très important pour les applications à la physique nucléaire du phénomène de scintillation gazeuse.

#### 4-4-1. Méthodes de mesures des durées de vie.

Des méthodes de mesure indirectes sont généralement utilisées [36] [40] : on mesure le coefficient d'absorption ou la largeur des raies spectrales, facteurs qui sont liés théoriquement à la durée de vie des états excités correspondants, comme on l'a vu au paragraphe 3-2-1.

Parmi les méthodes directes de mesure, la méthode la plus précise est celle des coïncidences retardées, utilisée surtout par ailleurs pour déterminer les durées de vie des états d'excitation nucléaire : on détecte avec deux photomultiplicateurs les deux photons émis au cours d'une transition en cascade, l'un des photomultiplicateurs étant sensible au photon émis par la première transition, l'autre au photon émis par la deuxième transition ; les impulsions électroniques provenant de l'émission d'un ou plusieurs photoélectrons par chaque photocathode sont envoyées sur un dispositif de coïncidence ; pour qu'il y ait coïncidence, on doit retarder la première impulsion d'un intervalle de temps  $\tau$  qui mesure la durée de vie de l'état excité intermédiaire. Cette méthode est difficilement applicable sous cette forme aux transitions atomiques car les deux photons émis ne sont jamais tous deux dans le domaine de sensibilité spectrale des photomultiplicateurs conventionnels. Par contre, cette méthode est utilisable sous une forme modifiée : la première impulsion étant alors synchrone de l'impulsion d'électrons rapides ou de rayons X produisant l'excitation du gaz, la radiation émise par le niveau excité dont on veut mesurer la durée de vie est isolée par un filtre ; c'est cette méthode qui a été appliquée par S. Heron et al. [35] au cas de l'hélium à très faible pression.

Nous avons utilisé ce principe de mesure mais ici le faisceau d'électrons est remplacé par les rayons  $\alpha$  issus d'une source radioactive : l'impulsion lumineuse résultant de l'excitation du gaz par une particule  $\alpha$  est détectée par un photomultiplicateur et l'impulsion électronique recueillie sur l'anode est analysée à l'aide d'un oscillographe. Cette méthode est généralement utilisée pour les mesures de durée de vie des niveaux excités dans les solides fluorescents.

L'instant d'émission du rayon  $\alpha$  n'est pas connu, on suppose que les électrons se dés excitent à partir de l'instant  $t = 0$  de passage de la particule nucléaire supposé infiniment bref, c'est-à-dire qu'il n'y a pas de temps de latence ; c'est bien ce qu'on admet lorsqu'on définit la durée de vie d'un niveau excité et cela est justifié par l'expérience.

Si le dispositif de mesure (photomultiplicateur et circuits d'observation associés) n'apportait aucune fluctuation ni aucun retard, on observerait l'arrivée d'impulsions infiniment brèves correspondant aux photoélectrons individuels quittant la photocathode. Ces impulsions seraient réparties de façon aléatoire, leur fréquence moyenne diminuant exponentiellement avec une constante de temps égale à la durée de vie cherchée.

En pratique il n'est pas possible de résoudre les photoélectrons individuels avec les photomultiplicateurs existants, car les fluctuations qu'ils introduisent sont grandes par rapport au temps moyen qui sépare l'émission de deux photoélectrons successifs ; c'est donc de l'intégrale de la distribution précédente qu'on déduit la durée de vie cherchée.

Nous allons donc examiner d'abord le principe de mesure de la durée de vie à partir de l'impulsion intégrée de charges recueillie sur l'anode du photomultiplicateur.

les hypothèses initiales sont les suivantes :

- 1/ Les photons émis sont distribués dans le temps de façon aléatoire à partir de l'instant d'excitation.
- 2/ La durée de l'impulsion d'excitation est infiniment brève par rapport aux durées de vie à mesurer.
- 3/ Les fluctuations de temps introduites par le dispositif de mesure sont faibles devant les durées de vie à mesurer.

Nous examinerons ensuite les limitations de la mesure lorsque les hypothèses 2 et 3 ne sont plus valables.

#### 4-4-2. Principe de la mesure de durée de vie.

Lorsqu'un certain nombre  $N_0$  d'atomes est excité sur un niveau de durée de vie  $\theta$ , le nombre de photons émis en fonction du temps est :

$$N = N_0 e^{-t/\theta} \quad (18)$$

Ces photons sont reçus par un photomultiplicateur et transformés en photoélectrons en une durée inférieure à  $10^{-10}$  s. Après multiplication les électrons sont collectés par l'anode (Figure 16). Nous supposerons d'abord que tous les électrons mettent le même temps (environ  $10^{-8}$  s) pour atteindre l'anode.

Soit :

R la résistance de charge de l'anode du photomultiplicateur;

C la capacité parasite d'anode ;

$q_0$  la charge électrique correspondant à une scintillation ;

A l'amplitude de l'impulsion anodique au temps t. ;

$i_1$  le courant circulant dans la résistance R.

$i_1$  est solution de l'équation différentielle :

$$i_1 + RC \frac{di_1}{dt} = \frac{q_0}{\theta} e^{-t/\theta}$$

L'impulsion de tension anodique a donc la forme suivante :

$$A = A_0 \frac{RC}{\theta - RC} (e^{-t/\theta} - e^{-t/RC}) \quad (19)$$

avec :

$$A_0 = \frac{q_0}{C}$$

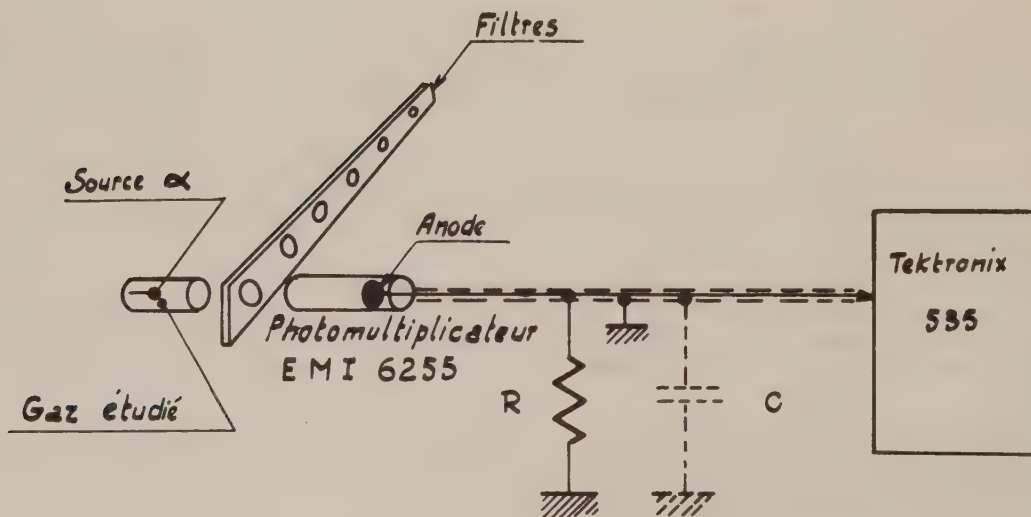


Figure 16 - Schéma du dispositif de mesure de durée de vie des états excités.

Le réseau de courbe  $A = f(t/\vartheta)$  peut être tracé pour différentes valeurs de  $\frac{RC}{\vartheta}$  (Figure 17). Pour mesurer  $\vartheta$ , on mesure alors l'amplitude  $A_1$  de l'impulsion obtenue pour  $\frac{RC}{\vartheta} \gg 1$ , puis on ajuste RC de façon que l'amplitude  $A_2$  de l'impulsion soit telle que  $\frac{A_1}{A_2} = n$ , on déduit alors  $\vartheta$  de la valeur de RC trouvée et du réseau  $A = f(t/\vartheta)$ .

Ceci est valable lorsque l'émission d'un seul niveau excité a été isolée ou bien quand il y a un niveau dont le rendement de luminescence est très grand par rapport aux autres. En général lorsqu'on observe la luminescence d'un gaz rare on constate que la courbe de décroissance comporte au moins deux exponentielles distinctes, dans ce cas on peut déterminer leurs constantes de temps ainsi :

Cas d'une décroissance exponentielle double.

Soient  $\vartheta_1$  et  $\vartheta_2$  les 2 constantes de temps,  $\vartheta_1 < \vartheta_2$ .

On suppose que l'intensité lumineuse est représentée par l'expression :

$$I = I_1 e^{-t/\vartheta_1} + I_2 e^{-t/\vartheta_2} \quad (20)$$

$I_1$  et  $I_2$  sont proportionnels au nombre d'atomes excités à l'instant 0 sur les niveaux 1 et 2 de durée de vie  $\vartheta_1$  et  $\vartheta_2$ .

La charge électrique présente à l'instant  $t$  sur l'anode du photomultiplicateur sera donc :

$$q = q_1 e^{-t/\vartheta_1} + q_2 e^{-t/\vartheta_2} \quad (21)$$

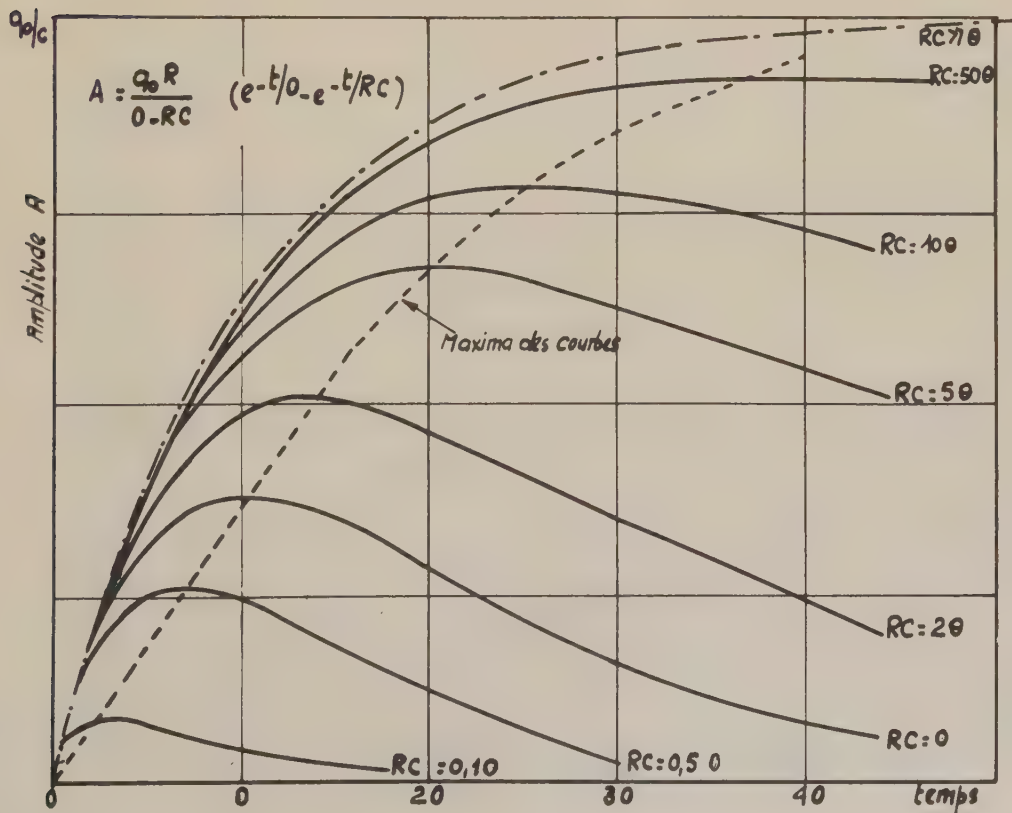


Figure 17 - Amplitude de l'impulsion à l'anode en fonction du temps  $t$ .  
(D'après Y. Koechlin Rapport CEA-1954).

Soit  $i_1$  le courant circulant dans la résistance de charge,  $i_1$  est solution de l'équation différentielle :

$$i_1 + RC \frac{di_1}{dt} = \frac{dq}{dt} = \frac{q_1}{\theta_1} e^{-t/\theta_1} - \frac{q_2}{\theta_2} e^{-t/\theta_2} \quad (22)$$

Compte-tenu des conditions initiales, on trouve que l'impulsion de courant anodique est de la forme :

$$A = A_1 \frac{RC}{\theta_1 - RC} (e^{-t/\theta_1} - e^{-t/RC}) + A_2 \frac{RC}{\theta_2 - RC} (e^{-t/\theta_2} - e^{-t/RC}) \quad (23)$$

avec :

$$A_1 = \frac{q_1}{C} \text{ et } A_2 = \frac{q_2}{C}$$

On a tracé sur la figure 18, quelques courbes représentatives de cette fonction pour différentes valeurs de RC et du rapport  $\frac{\theta_1}{\theta_2}$ .

L'amplitude correspondant au phénomène de constante de temps  $\theta_1$ , sera facilement mesurée sur l'impulsion intégrée ; on mesurera  $\theta_1$  comme il a été indiqué plus haut et on pourra alors en déduire  $\theta_2$ .

#### 4-4-3. Durée d'excitation du gaz.

La durée de l'impulsion d'excitation peut être évaluée facilement : c'est la durée de parcours d'un rayon  $\alpha$  dans le gaz. Celui-ci peut être déduit des courbes expérimentales donnant la vitesse de la particule en fonction du parcours. Une telle courbe a été tracée par Briggs et I. Curie [1] dans le cas de l'air T.P.N. elle est représentée sur la figure 19 ; pour les derniers millimètres  $v$  est déduit de la courbe d'ionisation en admettant que le pouvoir ionisant est proportionnel à l'énergie perdue sur une portion du trajet. On a arrêté la courbe à la vitesse  $v = 1,51.10^9$  cm/s des rayons  $\alpha$  de parcours maximum de l'ura-

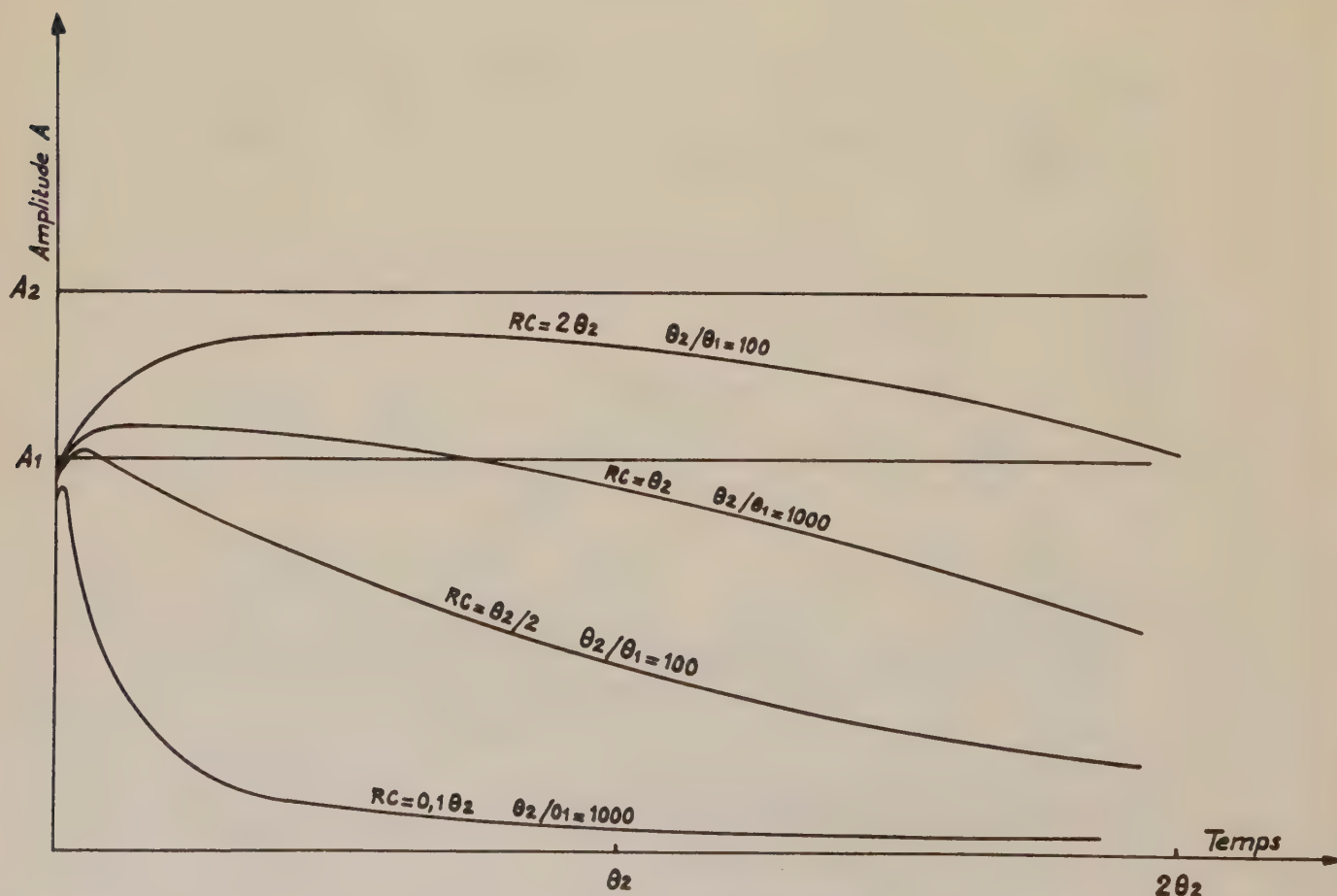
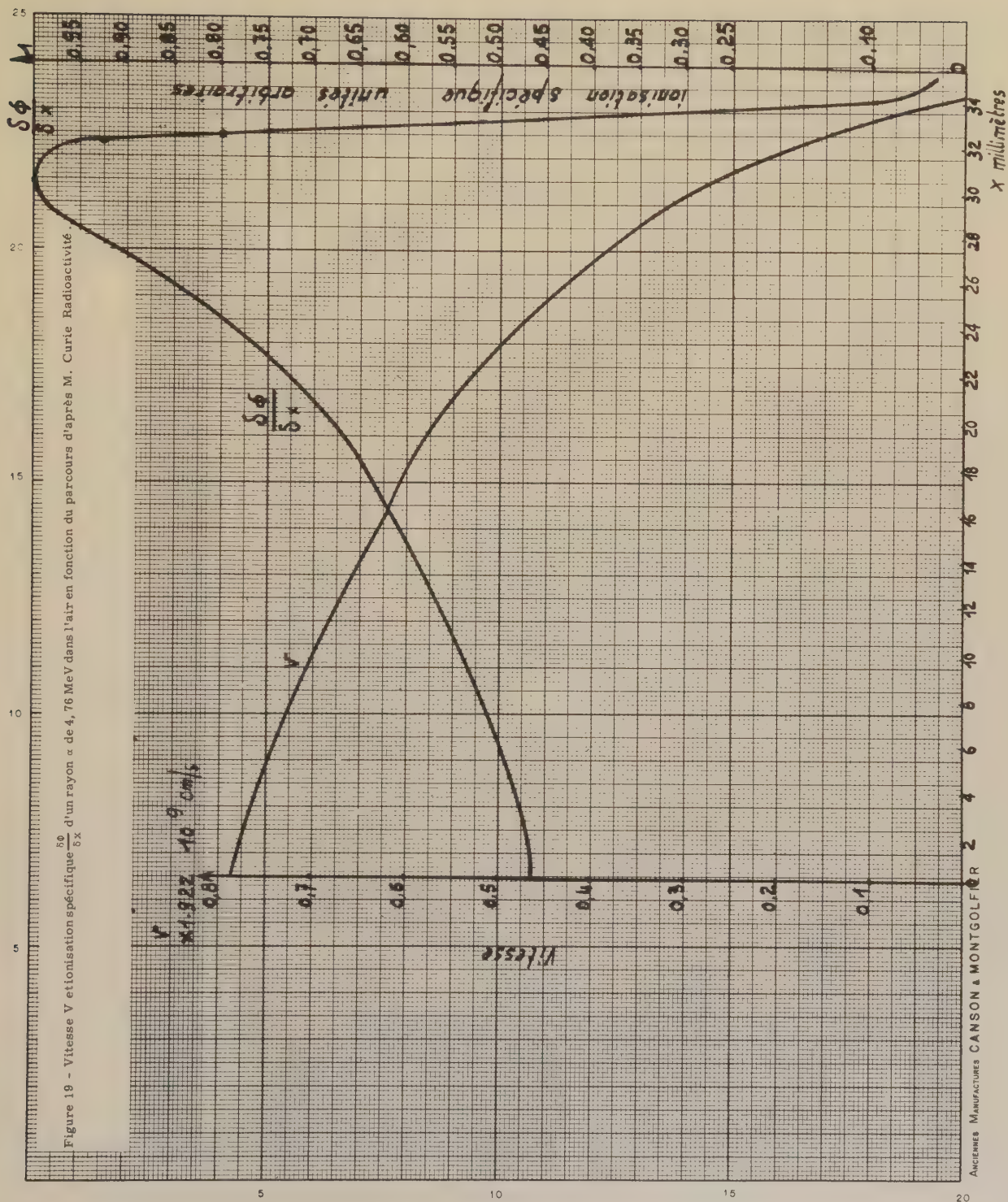


Figure 18 - Amplitude de l'impulsion à l'anode en fonction du temps pour  $A_1 = 0,7 A_2$  (cas du xénon).



nium. On en déduit la courbe donnant le parcours en fonction du temps, représentée sur la figure 20. On a tracé également les courbes donnant le pouvoir ionisant en fonction du parcours (courbe de Bragg) et en fonction du temps. L'excitation spécifique  $\phi$  transmise au gaz est en première approximation proportionnelle à l'ionisation spécifique, la courbe  $\phi = f(t)$  représente donc la variation de l'excitation transmise au gaz en fonction du temps. Cette courbe est représentée sur la figure 20. On voit que l'excitation transmise à l'air par les rayons  $\alpha$  varie très peu dans les 2,5 premières nanosecondes du parcours, puis elle s'annule complètement dans les 2 nanosecondes suivantes.

Nous avons tracé les courbes  $\phi = f(t)$  pour les gaz rares He, A, Kr et Xe en faisant une affinité égale au rapport des parcours des rayons  $\alpha$  dans l'air et chacun de ces gaz (dans les conditions normales de températures et de pression). Ces derniers sont indiqués sur le tableau VII ; le parcours dans l'air est 34,3 mm (toujours dans le cas de l'uranium II).

Les résultats trouvés sont réunis dans le tableau XI.

Tableau XI

Durée de parcours des rayons  $\alpha$  de U II dans les gaz.

| Gaz               | Air | He   | A   | Kr  | Xe   |
|-------------------|-----|------|-----|-----|------|
| t ns              | 4,7 | 28,2 | 5,3 | 3,7 | 2,70 |
| t <sub>1</sub> ns |     | 3    |     |     |      |

Dans le cas de l'hélium on a calculé à l'aide des courbes  $x = g(t)$  et  $\phi = f(t)$  la durée d'un parcours de 4 cm, distance utilisée dans le montage expérimental.

Suivant la valeur de la durée de vie des états excités par rapport à cette durée d'excitation, la variation de l'intensité lumineuse émise en fonction du temps reflètera les variations en fonction du temps de l'excitation, de la désexcitation ou d'une combinaison des deux.

Cette durée d'excitation est inversement proportionnelle à la pression, la courbe  $\phi = f(t)$  pourra donc être obtenue expérimentalement pour les gaz à basse pression, étant donné les valeurs des durées de vie des états excités citées au paragraphe 3-2-1.

#### 4-4-4. Fluctuations de temps de transit des électrons dans le photomultiplicateur.

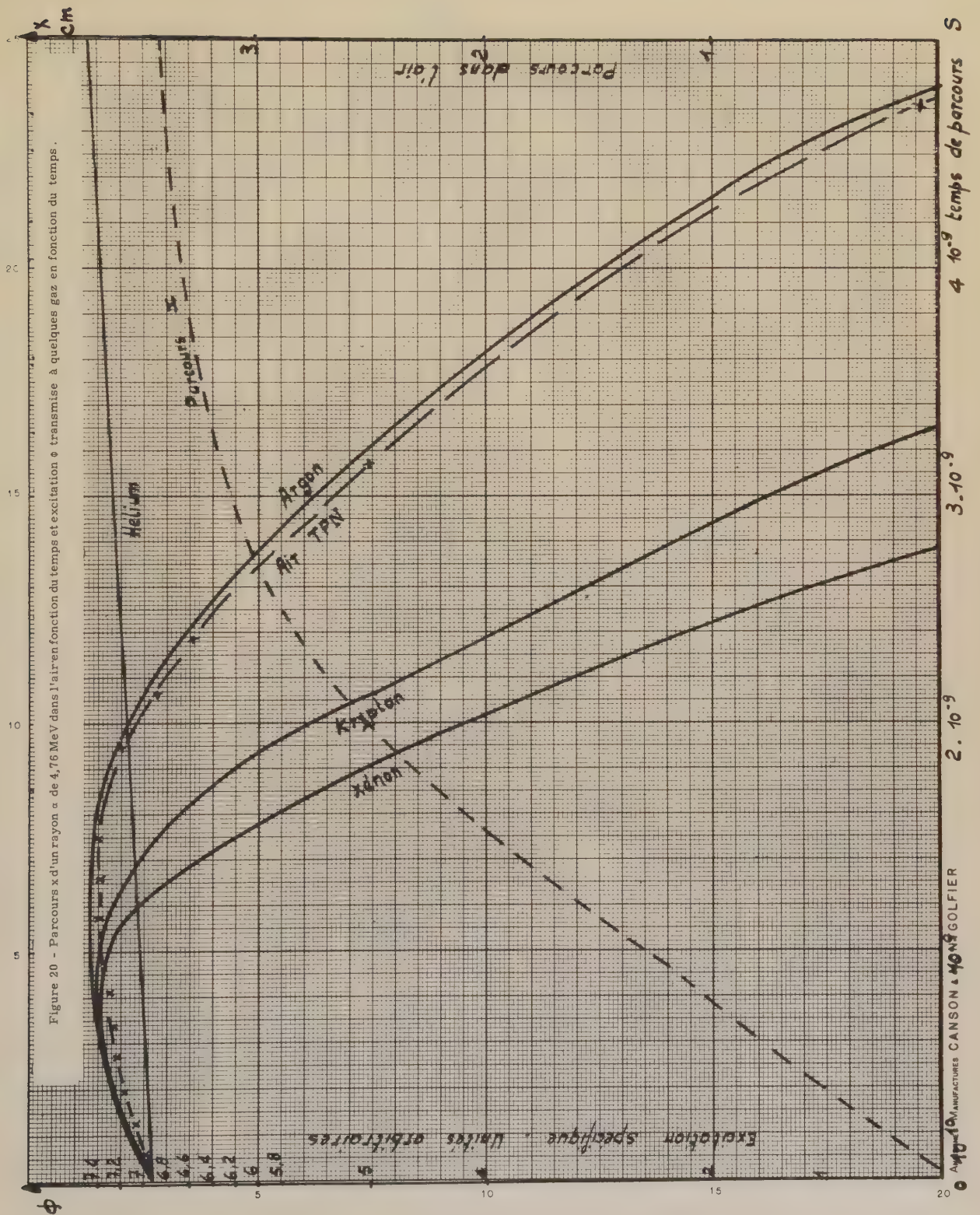
Jusqu'à présent nous avons supposé que les fluctuations de temps de transit des électrons dans le photomultiplicateur utilisé sont faibles vis à vis de la durée de vie  $\theta_1$ . Les fluctuations de temps de transit des électrons sont mesurées par la largeur à mi-hauteur de l'impulsion de courant anodique lorsque la photocathode reçoit une impulsion lumineuse de durée négligeable devant ces fluctuations.

Une telle impulsion lumineuse peut être réalisée par le rayonnement de Cerenkov provoqué par le passage d'un meson  $\mu$  du rayonnement cosmique dans un bloc de plexiglass ou de verre. Pour un bloc de plexiglass de 5 cm de long, la durée de parcours est de 0,15 ns.; le rayonnement de Cerenkov n'étant émis que pendant le passage de la particule, l'impulsion lumineuse correspondante a donc une durée de 0,15 ns. Y. Koechlin et al. [57] ont utilisé un tel dispositif pour mesurer les fluctuations de temps de transit dans un certain nombre de photomultiplicateurs; le dispositif électronique de mesure est un oscillographe Tektronix type 517 ou Edgerton type 2236 TW dans le cas des photomultiplicateurs "rapides" type Dario 56 AVP (dont le prototype est le L.E.P. 204). Les résultats des mesures de ces derniers auteurs sont les suivants :

Tableau XII

Fluctuations de temps de transit dans quelques photomultiplicateurs

| Fabricant | Type   | $\Delta \tau$        |
|-----------|--------|----------------------|
| E.M.I.    | 6260   | $2 \cdot 10^{-8}$ s. |
|           | 6255   | $2 \cdot 10^{-8}$ s. |
| Dario     | 51 AVP | $1 \cdot 10^{-8}$ s. |
| L.E.P.    | 204    | $2 \cdot 10^{-9}$ s. |
| Dario     | 56 AVP |                      |



Ces fluctuations sont de l'ordre de grandeur des durées de vie à mesurer, elles se déduisent quadratiquement des durées mesurées, il en sera de même des fluctuations  $\Delta \tau'$  introduites par les circuits électroniques associés au photomultiplicateur ; on peut écrire :

$$\vartheta^2 = x^2 - (\Delta \tau)^2 - (\Delta \tau')^2$$

où  $\vartheta$  est la durée de vie et  $x$  la valeur mesurée.

#### 4-4-5. Résultats des mesures de durées de vie moyennes des états excités des gaz purs.

Désirant utiliser un domaine spectral aussi étendu que possible on a employé d'abord un photomultiplicateur à fenêtré de quartz type E.M.I. 6255, malgré ses fluctuations de temps de transit relativement grandes. Le dispositif de mesure comprend le photomultiplicateur et un oscillographe Textronix type 541 équipé d'une caméra Polaroid. On a étudié la forme des impulsions obtenues sur l'anode du photomultiplicateur pour des constantes de temps RC de  $10^{-8}$  s et  $10^{-5}$  s. Cela nous a permis de mettre en évidence, dans tous les cas sauf celui de l'argon, deux durées de vie très différentes ; la plus courte, dont la mesure est limitée par les fluctuations de temps de transit du photomultiplicateur est inférieure ou égale à  $2 \cdot 10^{-8}$  s, l'autre plus longue dépend essentiellement du taux d'impuretés contenu dans le gaz.

Les durées de vie moyennes mesurées, ainsi que le pourcentage R de l'amplitude de l'impulsion intégrée qui correspond à la durée de vie la plus courte, sont réunis dans le tableau XIII.

Tableau XIII

Durées de vies moyennes des états excités dans quelques gaz  
Pourcentage des photons émis en un temps inférieur à  $2 \cdot 10^{-8}$  s

| $\vartheta$   | He                     | A                      | Kr                     | Xe                     | He + $10^{-5}$ N <sub>2</sub> | A + $10^{-4}$ N <sub>2</sub> | N <sub>2</sub>         |
|---------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|-------------------------------|------------------------------|------------------------|
| $\vartheta'$  | $\leq 2 \cdot 10^{-8}$ | $\leq 2 \cdot 10^{-8}$ | $\leq 2 \cdot 10^{-8}$ | $\leq 2 \cdot 10^{-8}$ | -                             | $\leq 2 \cdot 10^{-8}$       | $\leq 2 \cdot 10^{-8}$ |
| se-<br>condes | $3 \cdot 10^{-6}$      | -                      | $2 \cdot 10^{-6}$      | $10^{-7}$              | $2 \cdot 10^{-7}$             | $3 \cdot 10^{-7}$            |                        |
| R %           | 10                     | 100                    | 50                     | 75                     |                               | 25                           |                        |

On a montré à l'aide de filtres d'absorption que les photons émis avec la constante de temps la plus longue ont dans tous les cas la longueur d'onde moyenne la plus grande : par exemple, un filtre n'ayant que 10 % de transmission à 3085 Å arrête la luminescence à durée de vie courte dans l'argon et transmet 60 % de la luminescence de durée  $3 \cdot 10^{-7}$  s du mélange A +  $10^{-4}$  N<sub>2</sub>.

Les durées de vie les plus courtes peuvent être reliées aux transitions optiques, les autres aux niveaux métastables. L'étude spectrale précédente nous a montré que les niveaux métastables étaient probablement désexcités par choc avec l'azote, ceci est confirmé par l'influence très nette sur les durées de vie mesurées de l'introduction d'une très faible quantité d'azote : 10 p.p.m. dans le cas de l'hélium et 100 p.p.m. dans le cas de l'argon. Pour ce dernier gaz tout se passe comme si les états métastables de l'argon très pur avaient une durée de vie trop grande pour contribuer de manière sensible à l'impulsion anodique du photomultiplicateur ; en présence d'azote au contraire leur durée de vie à la suite de chocs de seconde espèce avec l'azote serait suffisamment diminuée pour que leur contribution devienne sensible.

La valeur mesurée de la durée de vie longue est d'ailleurs voisine de celle que l'on peut déduire en extrapolant les mesures de durée de vie des états métastables de l'argon faites par Futch à des pressions d'argon comprises entre  $10^{-2}$  et 10 mm de mercure.

#### Mesure des durées de vie très courtes.

Le dispositif de mesure précédent ne suffit pas pour mesurer les temps de luminescence les plus courts par suite des fluctuations de temps de transit trop importantes du photomultiplicateur E.M.I.

On a donc utilisé un photomultiplicateur L.E.P. type 204 : la figure 21 indique le schéma de câblage de la chaîne d'alimentation et de la sortie des impulsions. La capacité d'anode, câblage compris, est de  $8 \pm 1$  P.F.

Un oscillographe Edgerton type 2236 TW à plaques hélicoïdales est utilisé pour analyser l'impulsion. Les caractéristiques principales de l'oscillographe sont :

- bande passante : 2 000 MHz
- durée du balayage :  $2,5 \cdot 10^{-9}$  s par cm
- sensibilité :  $7,9$  V cm<sup>-1</sup>
- largeur de la trace :  $4 \cdot 10^{-2}$  mm



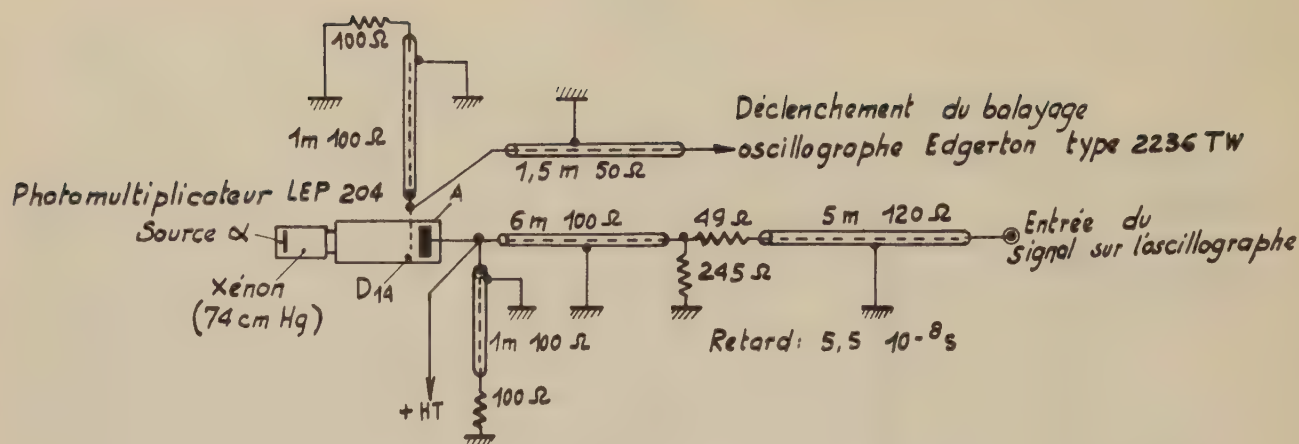


Figure 22 - Schéma du montage électronique utilisé pour la mesure des courtes durées de vie.

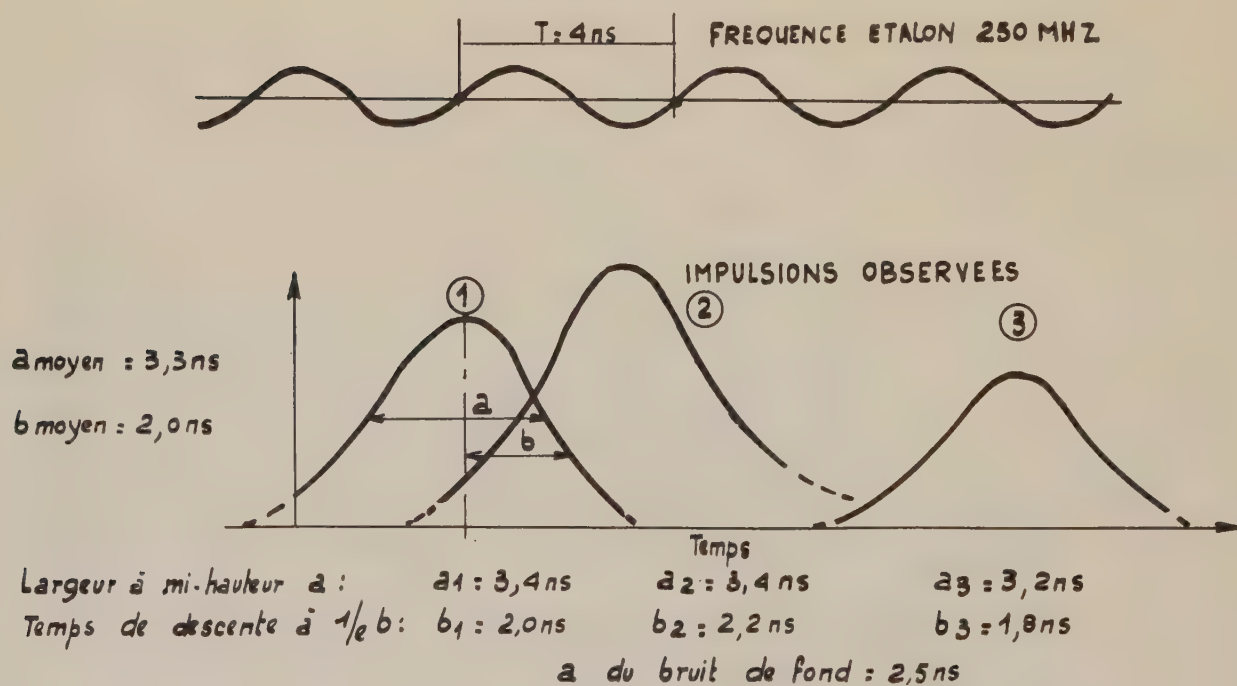


Figure 23 - Forme des impulsions de courant anodique provenant de l'excitation du xénon par les rayons  $\alpha$ .

Largeur à mi-hauteur  $a$ :  $a_1 = 3,4 ns$   $a_2 = 3,4 ns$   $a_3 = 3,2 ns$   
Temps de descente à  $1/e$   $b$ :  $b_1 = 2,0 ns$   $b_2 = 2,2 ns$   $b_3 = 1,8 ns$   
 $a$  du bruit de fond =  $2,5 ns$

L'enregistrement photographique des impulsions est réalisé sur du film Polaroid 46 L de sensibilité 1 000 A S A.

Sur la figure 22 on a indiqué le schéma du montage expérimental ; l'oscillographe est déclenché par l'impulsion provenant de la dernière dynode du photomultiplicateur ; l'impulsion de courant anodique est envoyée sur l'oscillographe à travers une ligne à retard formée de câbles coaxiaux introduisant un retard de  $5,5 \cdot 10^{-8}$  s.

La constante de temps RC à l'anode est égale à  $4 \cdot 10^{-10}$  s.

Afin de mesurer le temps de réponse du dispositif de mesures à un signal électrique à front raide, un générateur de tension type Epic monté avec un relais à mercure Clare type H6P 1006 est utilisé. Il fournit des impulsions de 10 V, dont le temps de montée est  $2 \cdot 10^{-10}$  s et la largeur  $3 \cdot 10^{-9}$  s (mise en forme par câble coaxial). On mesure ainsi un temps de montée voisin de  $10^{-9}$  s.

Les fluctuations de temps de transit du photomultiplicateur sont égales à  $2 \cdot 10^{-9}$  s (tableau XII).

Une fréquence étalon de 250 MHz a été utilisée pour l'étalonnage du temps de balayage.

Les impulsions anodiques sont représentées sur la figure 23 dans le cas du xénon excité par des rayons  $\alpha$ . Les impulsions provenant du bruit de fond du photomultiplicateur ne sont pas visibles, leur amplitude étant insuffisante pour déclencher l'oscillographe. La largeur à mi-hauteur des impulsions est  $3,3 \cdot 10^{-9}$  s. On peut donc en déduire la durée de vie moyenne  $\vartheta$  des états excités du xénon en soustrayant quadratiquement les fluctuations introduites par le dispositif de mesure :

$$\vartheta^2 = (3,3 \cdot 10^{-9})^2 - (2 \cdot 10^{-9})^2 - (10^{-9})^2$$

$$\vartheta = 2,25 \cdot 10^{-9} \text{ s.}$$

La précision de la mesure est de l'ordre de 15 %.

Le xénon est le seul gaz pour lequel on ait pu mettre en évidence une durée de vie inférieure à  $10^{-8}$  s ; dans tous les autres cas, le manque de sensibilité de la méthode, dû principalement au fait que l'énergie est surtout émise dans l'ultra-violet et que l'on avait une fenêtre de pyrex sur le photomultiplicateur, rendait la mesure impossible.

La durée de vie mesurée est égale, aux erreurs de mesure près, au temps de parcours des rayons  $\alpha$  dans le gaz à la pression de 740 mm de mercure. Cela signifie que la durée de vie réelle est probablement inférieure. Ce résultat est à rapprocher de celui obtenu par E.K. Zavoiski [54] : il mesure des durées de vie de  $10^{-11}$  s pour des atomes d'azote excités provenant de la dissociation de molécules produite par une étincelle électrique traversant l'azote à 10 atmosphères.

Une observation effectuée sur une fraction du parcours de la particule  $\alpha$  devrait permettre de reculer la limite de la mesure mais la sensibilité de la méthode devient insuffisante. Pour la même raison nous n'avons pas essayé de séparer à l'aide de filtres interférentiels l'émission d'un niveau d'excitation déterminé. En conclusion :

1/ Les collisions atomiques créent à haute pression une diminution très importante de la durée de vie des transitions optiques amenant celles-ci de la valeur de quelques  $10^{-7}$  s, pour une pression inférieure à  $10^{-3}$  mm de mercure, à une valeur inférieure à  $2 \cdot 10^{-8}$  s en général, inférieure à  $2,5 \cdot 10^{-9}$  s dans le cas du xénon. L'utilisation d'une pression élevée permet donc d'obtenir des temps de désexcitation très courts.

2/ La participation des états métastables peut être éliminée en utilisant un gaz suffisamment pur pour que le nombre de photons émis par unité de temps par les niveaux métastables soit négligeable.

On peut cependant espérer diminuer suffisamment la durée de vie apparente des niveaux métastables par l'introduction d'une quantité contrôlée d'azote dans le gaz rare. Cela aurait l'avantage d'augmenter le rendement de luminescence du gaz car une partie importante de l'énergie (spécialement dans le cas de l'hélium et de l'argon) est emmagasinée par les états métastables à la suite des transitions optiques des niveaux d'excitation supérieurs ; c'est ce que nous allons examiner maintenant.

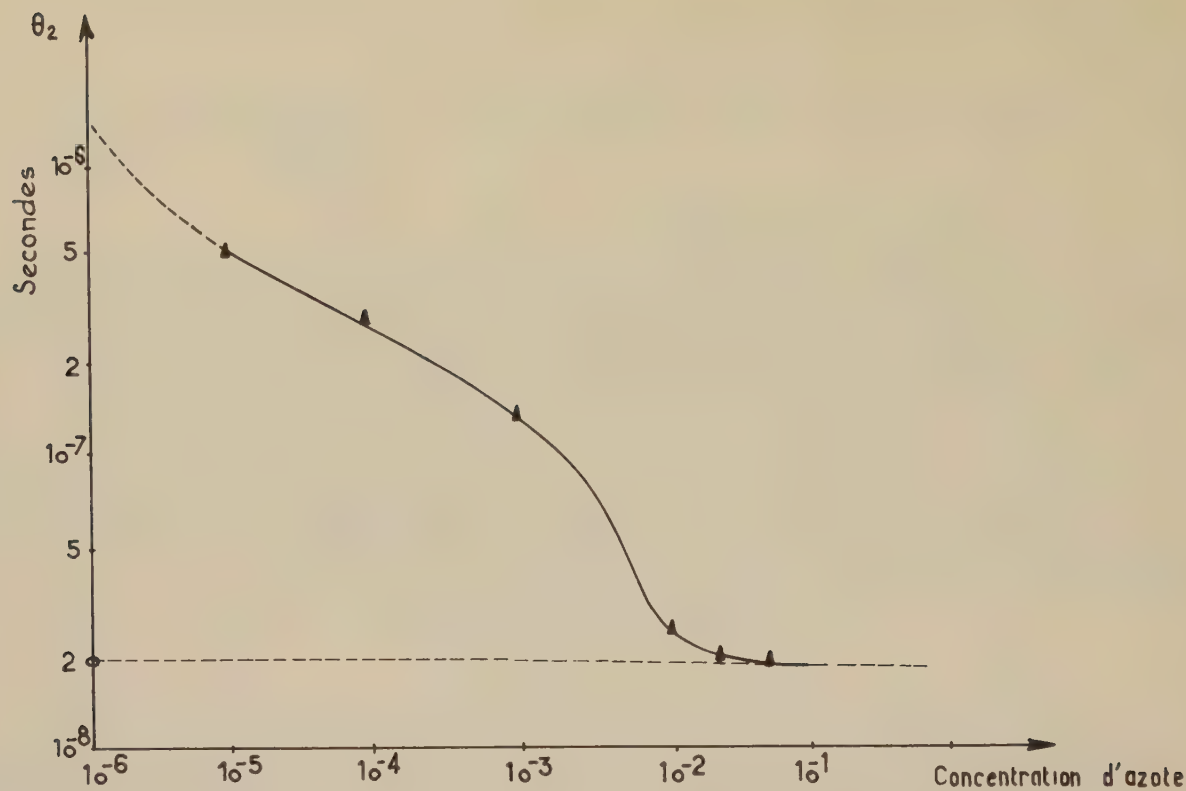


Figure 24 - Variation de la durée de vie moyenne en fonction de la concentration d'azote dans l'hélium.

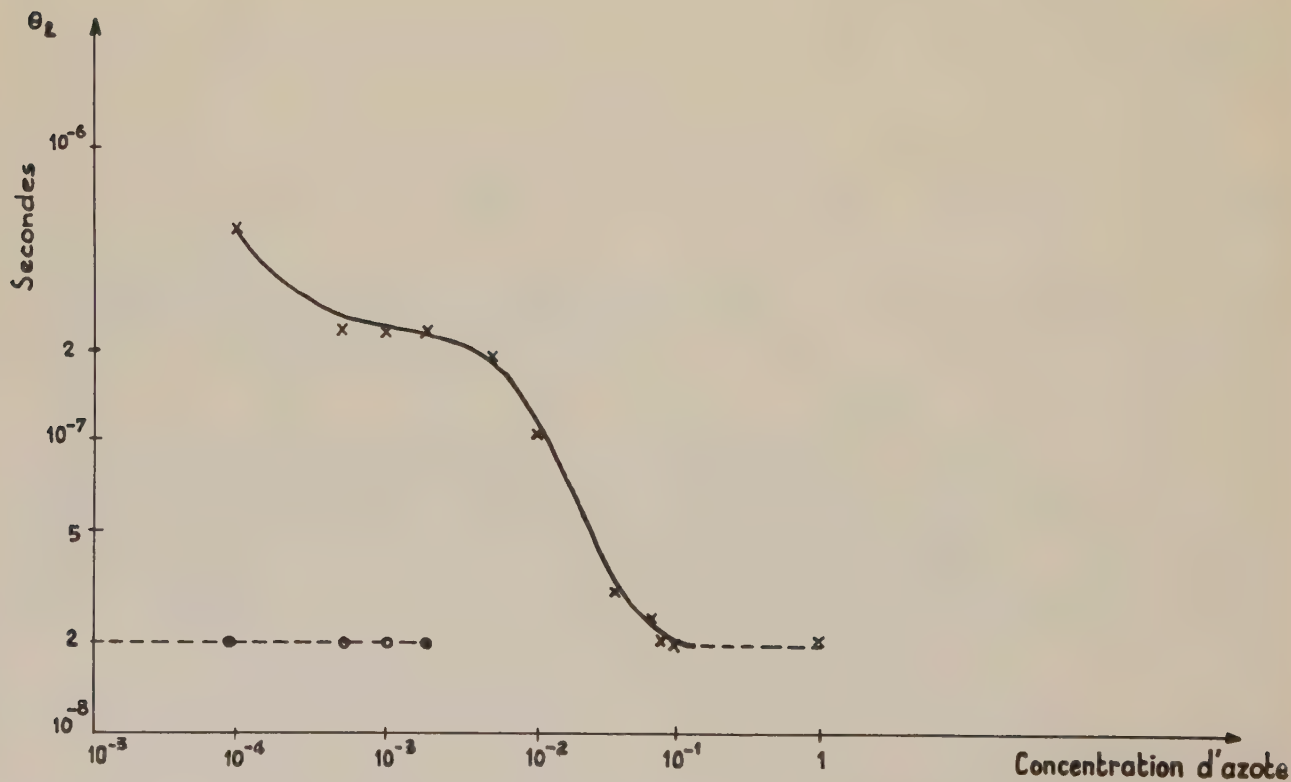


Figure 25 - Variation de la durée de vie moyenne en fonction de la concentration d'azote dans l'argon.

#### 4-4-6. Résultats des mesures de durée de vie dans les mélanges de gaz rares avec l'azote.

On a étudié les variations des durées de vie dans le cas des mélanges Hélium, Azote et Argon, Azote pour des concentrations croissantes d'azote.

##### 1/ Cas de l'hélium

Nous avons vu que dans l'hélium pur la durée de vie moyenne la plus longue est  $3.10^{-6}$  s. A mesure que l'on augmente la concentration d'azote cette durée de vie diminue pour atteindre une valeur égale à  $2,5.10^{-8}$  s pour une concentration de 5 % (Figure 24).

##### 2/ Cas de l'argon

Nous avons vu que la seconde constante de temps  $\vartheta_2$  apparaît pour une concentration d'azote de 100 p.p.m. et on a  $\vartheta_2 = 3.10^{-7}$  s. A mesure que l'on augmente la concentration d'azote  $\vartheta_2$  décroît et atteint  $2.10^{-8}$  s pour une concentration de 10 %. Le phénomène, à durée de vie courte  $\vartheta_1 \leq 2.10^{-8}$  s cesse d'être visible à partir d'une concentration d'azote de  $2.10^{-3}$  (Figure 25). Le palier tracé en pointillé n'a pas de sens physique, il représente la limite expérimentale de la mesure due aux fluctuations de temps de transit du photomultiplicateur.

Le fait que les durées de vies moyennes dépendent fortement de la concentration d'azote prouve bien que l'azote n'est pas excité par absorption des photons émis par le gaz principal, dans ce cas, en effet, seul le nombre de photons reçus varierait avec la concentration. On a donc un transfert d'énergie par chocs de seconde espèce avec les atomes et probablement les ions des gaz rares excités sur des niveaux métastables, un certain nombre de molécules d'azote se trouvant excitées après ces collisions.

Une autre possibilité pour obtenir des durées de vie courtes,  $2,5.10^{-8}$  s pour l'hélium et  $2.10^{-8}$  s pour l'argon, à la pression atmosphérique, consiste donc à ajouter au gaz rare un gaz susceptible de désexciter rapidement ses états métastables et d'émettre dans la région visible du spectre, ce qui est le cas de l'azote. Bien que les durées de vie obtenues soient moins courtes que celles des niveaux optiques, cela peut constituer une solution pratique intéressante dans le cas des gaz rares pour lesquels une partie importante de l'énergie est stockée sur les niveaux métastables (Hélium et Argon).



## 4-5

### INFLUENCE DES RECOMBINAISONS IONIQUES SUR LA LUMINESCENCE

Nous avons vu au paragraphe 4-2-1 l'ordre de grandeur du nombre d'ions créés par le passage d'un rayon  $\alpha$  dans le gaz. Ces ions excités ou non peuvent revenir à l'état fondamental puis se recombiner après une série de transitions radiatives ; inversement des atomes ayant un ou plusieurs électrons sur des niveaux excités peuvent être formés par la recombinaison des ions et des électrons :



D'après le principe de conservation de l'énergie, on a dans le premier cas :

$$h\nu = W_i + W_e \quad (24)$$

$W_i$  : énergie d'ionisation de A ;

$W_e$  : énergie cinétique de l'électron

et dans le deuxième cas :

$$h\nu' = W_i - W_e + W_e \quad (25)$$

$W_e$  : énergie d'excitation du niveau sur lequel vient l'électron recombiné.

Soit  $\sigma_r$  la section efficace de recombinaison radiative : elle est comprise entre  $10^{-21}$  et  $10^{-20}$   $\text{cm}^2$  pour  $\text{He}^+$  et diminue quand la masse de l'ion augmente et quand la vitesse relative de l'ion et de l'électron augmente [31].

On doit donc s'attendre à ce que la participation du phénomène de recombinaison à l'émission de lumière soit faible. Un certain nombre d'expérimentateurs, en particulier Lees [60], Audubert [3] et Ward [61], ont étudié l'effet d'un champ électrostatique sur la luminescence des gaz rares et de l'azote provoquée par bombardement d'électrons ou de rayons  $\alpha$ . Les champs électriques utilisés, perpendiculaires au faisceau d'ions, atteignaient 2000 V. $\text{cm}^{-1}$ .

Si la recombinaison des ions participe à l'émission de lumière on devrait voir diminuer l'intensité de la luminescence quand on collecte les ions en appliquant le champ électrique au gaz.

Or, les auteurs cités n'ont observé aucune variation dans l'intensité de la luminescence.

Nous avons repris ces expériences dans la bande de longueur d'onde : 2200 Å à 5500 Å.

Le dispositif expérimental est schématisé sur la figure 26. Un champ électrique continu et uniforme est appliqué au gaz, le faisceau de particules  $\alpha$  canalisées étant perpendiculaire à la direction du champ électrique.

Nous avons vérifié que le champ électrique appliqué en l'absence de particules ionisantes ne perturbait pas le fonctionnement du photomultiplicateur, en mesurant le courant anodique dû au bruit de fond thermoélectronique de la photocathode : il est bien indépendant du champ électrique extérieur.

Nous avons mesuré à la fois l'impulsion de courant sur l'anode du photomultiplicateur et l'impulsion provenant de la collection électronique dans le gaz sur les électrodes de champ.

Nous avons obtenu les résultats suivants, quelle que soit la bande de longueur d'onde examinée :

1/ aucune variation de l'amplitude du signal lumineux tant que le champ électrique est inférieur à 100 volts/cm.

2/ un accroissement important du signal lumineux pour des champs électriques supérieurs, le coefficient de multiplication obtenu étant de 60 pour un champ de 600 volts/cm. Ce phénomène a lieu avant que le champ électrique appliqué soit suffisant pour produire une multiplication électronique dans

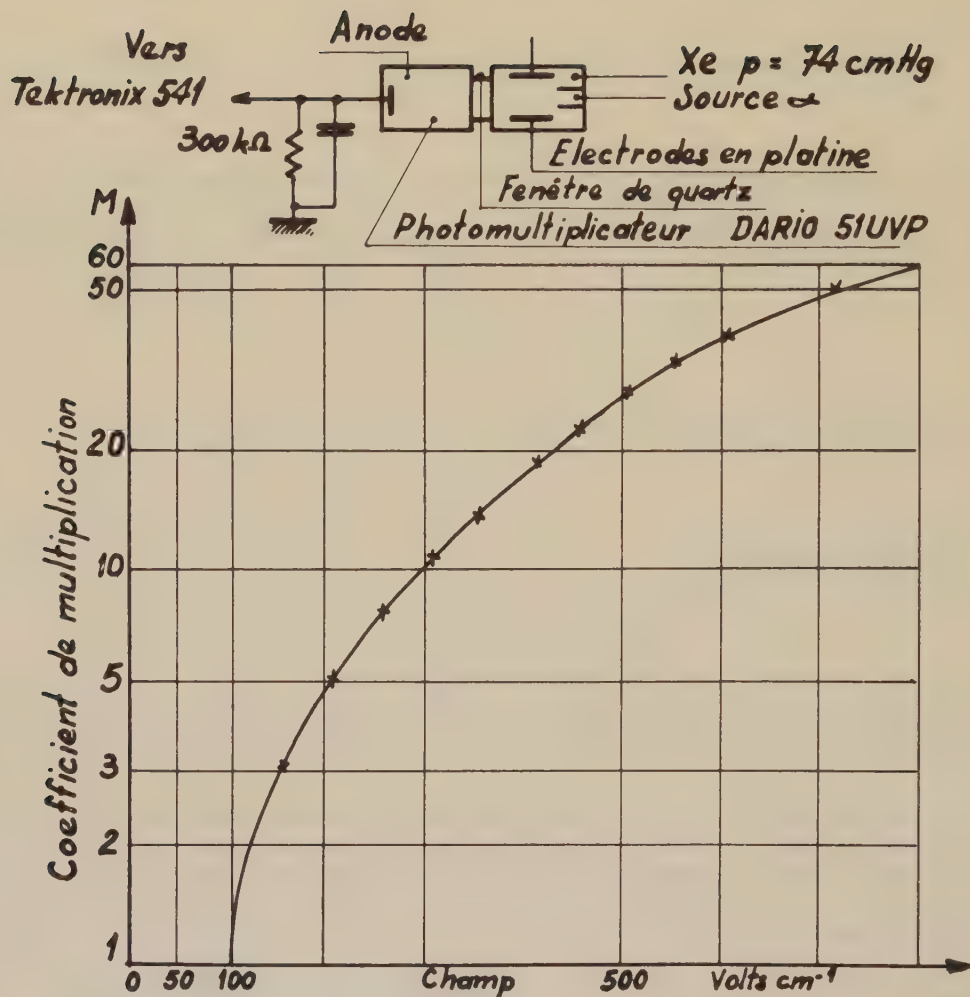


Figure 26 - Influence d'un champ électrique uniforme sur la luminescence du xénon traversé par des particules  $\alpha$  de 4,7 MeV.

le gaz : les électrons libérés par la particule  $\alpha$  acquièrent sous l'influence du champ une énergie suffisante pour exciter les atomes du gaz rare, mais insuffisante pour les ioniser.

Donc ou bien les photons émis lors de la recombinaison des ions sont situés en dehors de la bande spectrale observée ou bien la diminution attendue du nombre de photons est masquée par le 2ème phénomène que nous avons mis en évidence, et qui est analogue à celui observé pour les électrons dans le cas des compteurs proportionnels.

Ce deuxième phénomène peut s'expliquer de la façon suivante: les électrons formés par ionisation du gaz par les particules nucléaires incidentes sont accélérés dans le champ électrique et excitent les atomes de gaz. Le fait que la durée de luminescence correspondant à la multiplication soit de  $2 \cdot 10^{-6}$  s, lorsque le rapport du champ électrique (en V/cm) et de la pression (en mm de mercure) est voisin de 1, valeur pour laquelle la vitesse des électrons dans le xénon est  $3 \cdot 10^5$  cm.s<sup>-1</sup>[62], rend très probable l'explication précédente.

Sur la figure 26 on indique la variation du coefficient de multiplication dans le xénon pur en fonction du champ appliqué.

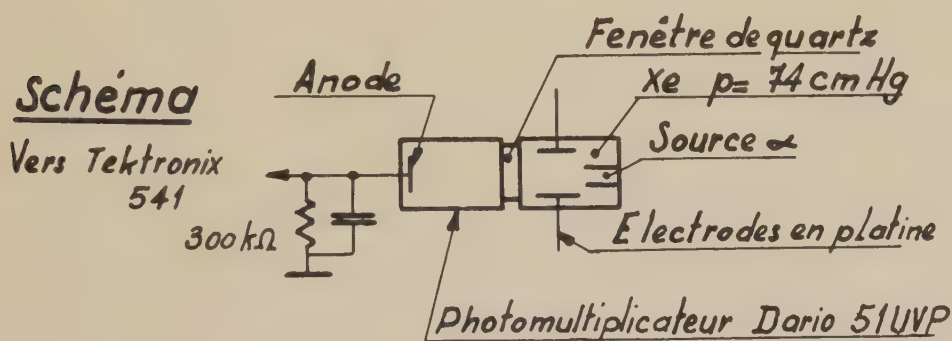
La figure 27 montre la forme des signaux obtenus avec une constante de temps à l'anode du photomultiplicateur Dario 51 UVP de  $10^{-5}$  s.

- 1/ en l'absence de champ électrique ;
- 2/ en présence d'un champ électrique croissant.

On voit que les deux phénomènes d'émission de lumière, sont séparés par un intervalle de temps  $\Delta t$  d'autant plus petit que le champ est plus intense ; cet intervalle  $\Delta t$  est égal au temps nécessaire pour qu'un nombre suffisant d'électrons acquiert l'énergie de seuil d'excitation ; le temps de désexcitation est petit devant  $\Delta t$ , donc n'intervient pas.

A mesure que le champ électrique augmente, l'amplitude de la deuxième partie de l'impulsion croît, la première partie due à l'excitation du gaz par la particule  $\alpha$  et les électrons primaires restant inchangée.

Nous avons défini le coefficient de multiplication comme le rapport entre les amplitudes des deux parties de l'impulsion lumineuse.



## Forme des signaux: Constante de temps à l'anode: $10^{-5}$ s

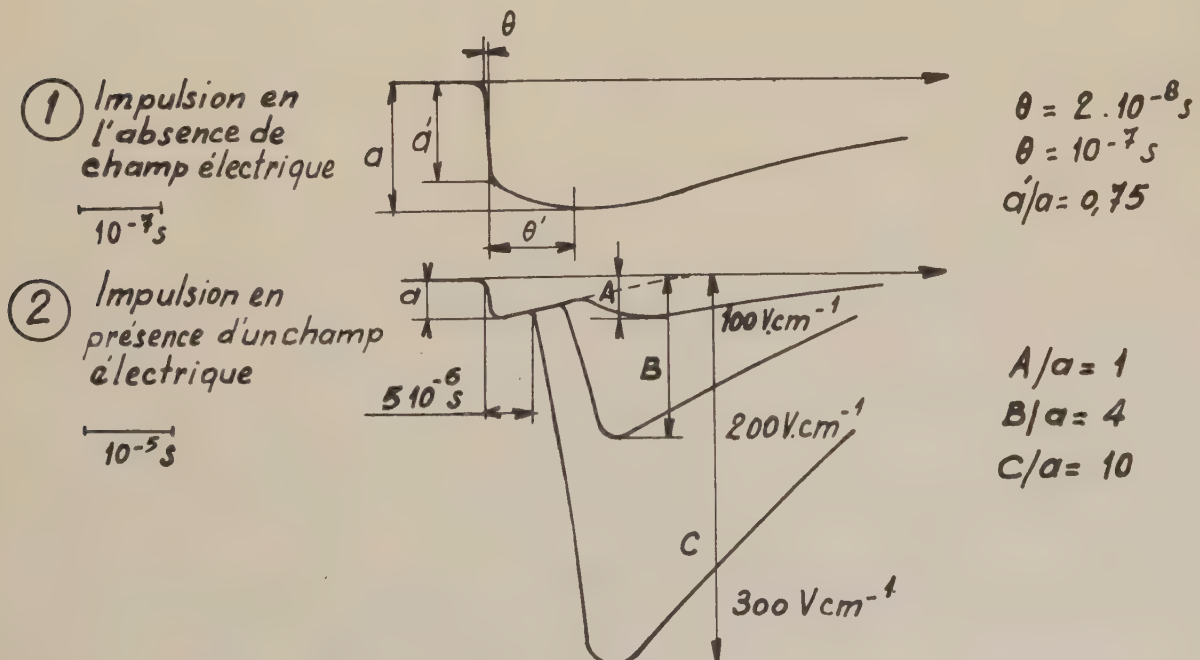


Figure 27 - Influence d'un champ électrique uniforme sur les scintillations dans le xénon.

Ce phénomène de multiplication s'est révélé encore plus sensible à l'influence des impuretés que les durées de vie des atomes excités. En effet, pour un champ électrique donné appliqué au gaz, le coefficient de multiplication est divisé par 2 par l'introduction d'une quantité d'impuretés telle que les durées de vie moyennes ne sont pas modifiées de façon mesurable. Cela pourrait expliquer l'échec des auteurs cités dans la mise en évidence de ce phénomène de multiplication de photons.

Au point de vue pratique, le phénomène est intéressant, car il permet d'obtenir avec un scintillateur gazeux, des impulsions de lumière ayant (pour un rayon  $\alpha$  ou une particule de fission, ou un rayon  $\beta$  de faible énergie) une amplitude supérieure à celle qui est donnée par les meilleurs scintillateurs solides actuels (NaI, Tl).

La durée de l'impulsion avec le xénon à la pression de 740 mm de mercure est plus grande ( $2 \cdot 10^{-6}$  s lorsque le champ électrique est de 700 V/cm) que dans le cas de NaI, Tl pour lequel la durée de luminescence est  $2,5 \cdot 10^{-7}$  s, mais nous verrons que le fait que l'on conserve toujours une fraction des photons émis en un temps inférieur ou égal à  $2,5 \cdot 10^{-9}$  s peut, dans certaines applications, présenter un grand intérêt.

## V

### CARACTÉRISTIQUES DES SCINTILLATEURS GAZEUX

Nous allons d'abord examiner les caractéristiques nécessaires pour qu'un matériau luminescent constitue un bon détecteur de radiations nucléaires, nous définirons ensuite les caractéristiques des scintillateurs gazeux, ce qui nous permettra de prévoir leurs domaines d'utilisation possibles.

#### 5-1. DEFINITION DES CARACTERISTIQUES NECESSAIRES D'UN SCINTILLATEUR.

Les principales caractéristiques sont :

- 1/ un spectre d'émission aussi voisin que possible du domaine de sensibilité spectrale des photomultiplicateurs conventionnels.
- 2/ une auto-absorption des photons émis aussi réduite que possible.
- 3/ un indice de réfraction assez faible de façon que les photons émis puissent sortir facilement du scintillateur
- 4/ une forme et des dimensions pouvant s'adapter à la nature des particules à détecter.
- 5/ un temps de montée et un temps de descente de la luminescence émise aussi courts que possible.
- 6/ un rendement élevé de conversion de l'énergie de la particule incidente en photons.
- 7/ un rendement quantique élevé ; le rendement quantique est le rapport entre le nombre de particules détectées et le nombre de particules traversant le scintillateur.
- 8/ un pouvoir de séparation élevé entre les particules de diverses natures (en particulier, pas de saturation pour les particules très ionisantes) et, entre deux particules de même nature, un bon pouvoir de séparation en énergie.

En ce qui concerne les caractéristiques physiques des gaz rares utilisés comme scintillateurs, on peut noter, d'après ce que nous avons vu plus haut, que :

- 1/ le spectre d'émission peut être adapté au domaine de sensibilité spectrale des photomultiplicateurs conventionnels en utilisant par exemple les mélanges de gaz rares avec l'azote.
- 2/ l'auto-absorption du scintillateur pour ses propres radiations est négligeable pour les longueurs d'onde comprises entre 2 500 et 6 000 Å qui nous intéressent ici.
- 3/ l'indice de réfraction étant voisin de 1, le problème de la sortie des photons ne se pose pas.
- 4/ les possibilités d'adaptation sont très grandes puisqu'on peut choisir à la fois la pression du gaz et la forme de l'ampoule qui le contient.
- 5/ le temps de montée de la luminescence est négligeable dans le cas des gaz purs et de l'ordre de  $10^{-9}$  s dans le cas des mélanges avec l'azote ; le temps de descente est inférieur ou égal à  $2 \cdot 10^{-9}$  s dans certains cas.

Nous examinerons maintenant les caractéristiques des scintillateurs gazeux en vue de la détection des particules nucléaires.

#### 5-2. RENDEMENT DE CONVERSION DES GAZ.

Le rendement de conversion d'un scintillateur est le rapport entre l'énergie émise sous forme de photons et l'énergie totale  $E$  perdue par la particule nucléaire dans le scintillateur.

### 5-2-1. Gaz purs.

Nous avons vu au paragraphe 4-1-3 les paramètres dont dépend le nombre de photoélectrons libérés par la photocathode du photomultiplicateur lorsqu'une particule nucléaire perd une énergie  $E$  dans le scintillateur ; ces paramètres sont très difficilement mesurables dans le cas des gaz par suite de l'étendue du spectre d'émission.

Nous n'avons donc pas effectué de mesure absolue du nombre de photons émis pour une perte d'énergie donnée d'une particule nucléaire. Nous avons mesuré seulement le nombre  $\delta$  de photoélectrons quittant la photocathode lorsqu'une particule  $\alpha$  de 5 MeV perd la totalité de son énergie dans le gaz.

Les mesures ont été effectuées avec un photomultiplicateur à fenêtre de quartz ; l'amplitude de l'impulsion de tension obtenue sur l'anode a été mesurée avec un oscillographe Tektronix 535. On a comparé ces résultats à ceux obtenus avec deux scintillateurs classiques :

- l'iodure de sodium activé au thallium ;

- le tétraphénylbutadiène dans le polystyrène : un film de 60  $\mu$  d'épaisseur a été utilisé ; le parcours maximum des rayons  $\alpha$  de l'uranium II ( $E = 4,76$  MeV) est de 32  $\mu$  dans le scintillateur.

Les résultats obtenus sont réunis dans le tableau suivant :

Tableau XIV  
Nombre de photoélectrons correspondant à  
l'absorption d'une particule  $\alpha$  de 5 MeV  
dans quelques scintillateurs

| Scintillateur    | $\delta$ |
|------------------|----------|
| He "pur"         | 600      |
| A "              | 180      |
| Kr "             | 200      |
| Xe "             | 400      |
| N <sub>2</sub> " | 80       |
| T. P. B.         | 180      |
| I Na (Tl)        | 4 000    |

Les résultats obtenus dans le cas de l'hélium sont extrapolés à partir d'une mesure sur une fraction du parcours égale à 4 cm, en supposant que l'excitation produite par unité de parcours suit la même loi en fonction du parcours que l'ionisation (courbe de Bragg) ; cette hypothèse est valable puisque les sections efficaces d'excitation et d'ionisation varient d'une manière identique avec l'énergie de la particule incidente. Une partie importante de l'énergie du rayon  $\alpha$  étant perdue dans le quartz, on a vérifié que celui-ci émettait une luminescence suffisamment faible pour ne pas gêner celle donnée par le gaz : en fait la luminescence du quartz donne des impulsions anodiques inférieures même aux impulsions de bruit de fond thermoélectronique du photomultiplicateur.

L'hélium et le xénon ont le rendement le plus élevé ; respectivement 15/100 et 1/10 de celui de l'iodure de sodium. Un rendement supérieur peut être obtenu en utilisant un convertisseur de lumière dans les conditions que nous avons définies au paragraphe 4-1-4. On peut ainsi obtenir avec le xénon et le tétraphénylbutadiène un rendement lumineux égal à 50 % de celui de I Na (Tl). Récemment Northrop a obtenu un rendement égal à celui de I Na (Tl) en utilisant le diphénylstilbène comme convertisseur de lumière [47].

Le rendement de conversion de I Na (Tl) pour les rayons  $\alpha$  de 5 MeV est de 3 % environ [63], c'est donc un rendement du même ordre qu'on obtiendrait avec l'ensemble xénon-diphénylstilbène.

### 5-2-2. Rendement de conversion des mélanges.

Le nombre de photons détectables par une optique de quartz est relativement faible dans le cas des gaz purs. Il pourra être augmenté si l'énergie des niveaux d'excitation du gaz est transférée, au cours de chocs de 2ème espèce, sur des niveaux du même gaz ou d'un gaz secondaire émettant des radiations de plus grande longueur d'onde.

Nous avons vu dans l'étude spectrale de la luminescence que l'azote était susceptible de favoriser de tels transferts aussi avons-nous étudié le rendement de conversion de l'hélium et de l'argon en fonction de la concentration d'azote qu'ils contiennent.

Nous avons effectué la mesure du nombre total de photoélectrons partant de la photocathode d'un photomultiplicateur à fenêtre de quartz pour un rayon  $\alpha$  de 5 MeV absorbé dans le mélange.

Dans les deux cas la grandeur mesurée passe par un maximum mais ce maximum n'est pas obtenu pour la même concentration d'azote : 50 p.p.m. pour l'hélium et 0,5 % pour l'argon (Fig. 28 et 29). On a indiqué également l'allure de la variation du nombre de photons reçus dans un temps court (constante de temps  $RC = 10^{-8}$  s).

Par suite des variations de la durée de luminescence avec la concentration d'azote les maxima des courbes obtenues pour des constantes de temps différentes ne coïncident pas.

Nous avons vu au paragraphe 3-3 que lorsqu'un scintillateur est composé d'un solvant et d'un soluté, l'intensité lumineuse émise par le soluté passe par un maximum quand la concentration de celui-ci augmente par suite des interactions non radiatives entre molécules de soluté.

L'étude, effectuée au paragraphe 4-4, de la densité optique des bandes de l'azote émises par le mélange hélium-azote a confirmé qualitativement ce résultat ; mais nous avons vu que les interactions non radiatives entre molécules d'azote pour une concentration de celles-ci de l'ordre de 200 p.p.m. étaient insuffisantes pour expliquer la décroissance observée. L'étude spectrale nous a montré que le transfert d'énergie sur le mercure devait également intervenir.

Nous trouvons ici des résultats semblables mais la valeur de  $c$  correspondant au maximum est plus faible, ceci est dû à l'imprécision des mesures et au fait que le photomultiplicateur est sensible à une partie des photons émis par l'hélium pur.

Le gain sur le nombre total de photons reçus par rapport au cas du gaz rare pur est de 3,5 dans le cas de l'argon et 2 dans le cas de l'hélium. On a donc 630 et 1 200 photoélectrons pour un rayon  $\alpha$  de 5 MeV absorbé dans les mélanges argon-azote et hélium-azote.

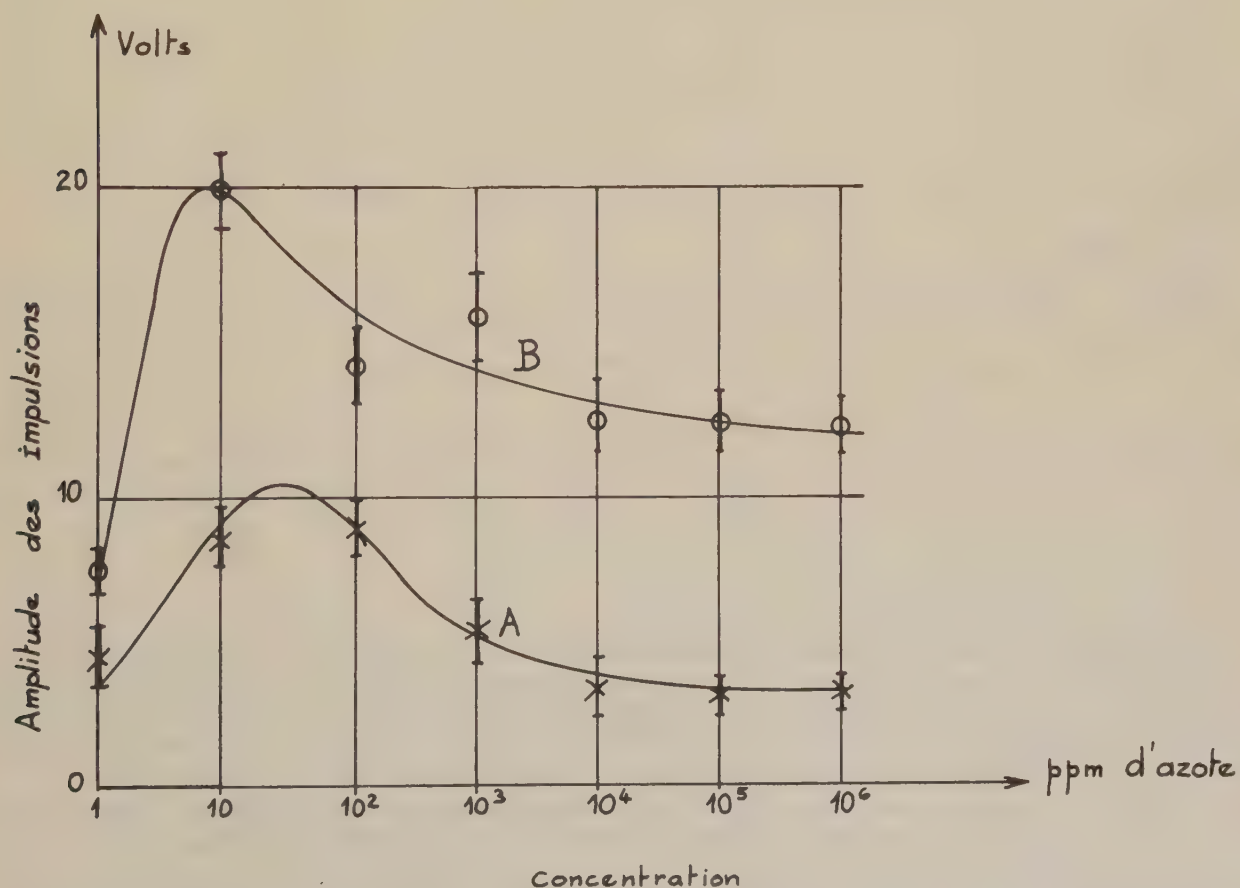


Figure 28 - Amplitude des impulsions en fonction de la concentration de l'azote dans l'hélium.

Photomultiplicateur EMI 6255

A  $RC = 10^{-5}$  s.  $G = 210^6$   
 B  $RC = 10^{-6}$  s.  $G = 10^8$

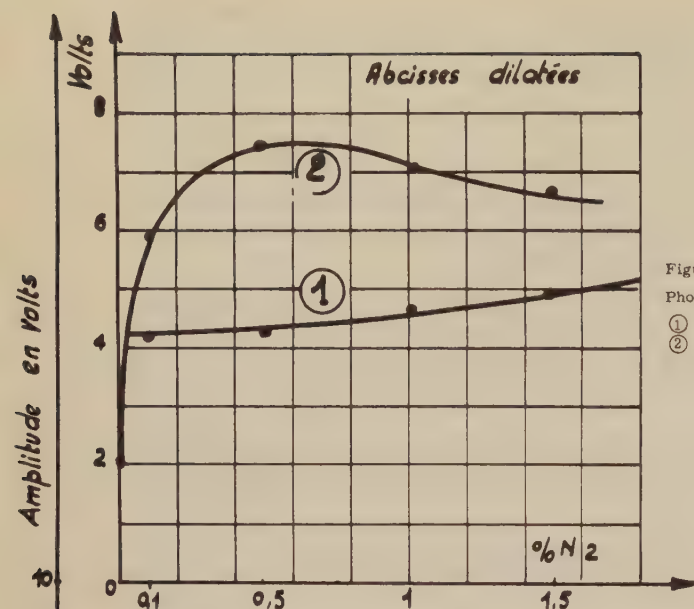
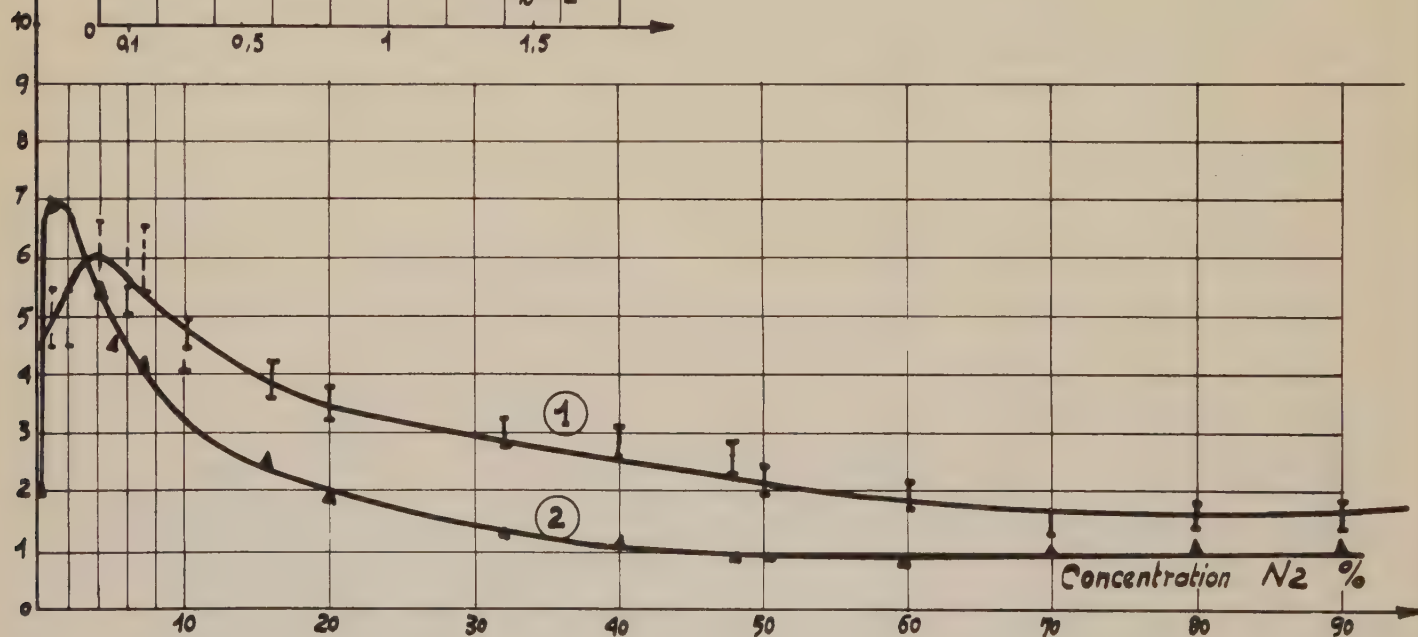


Figure 29 - Amplitude des impulsions en fonction de la concentration de l'azote dans l'argon.

Photomultiplicateur EMI 6255

- ①  $RC = 10^{-6} s$   $G = 10^6$   
 ②  $RC = 10^{-5} s$   $G = 10^7$



### 5-2-3. Variation de l'intensité de la luminescence avec l'énergie et la nature des particules incidentes.

Les sections efficaces d'excitation des atomes d'hélium par les ions passent par un maximum pour une énergie voisine de 110 KeV pour les protons et 220 KeV pour les rayons  $\alpha$ . Pour des énergies supérieures la section efficace varie comme  $W^{-1} \log. W$ ;  $W$  étant l'énergie cinétique de l'ion incident, comme on l'a vu au paragraphe 3.

Cependant les données théoriques ou expérimentales manquent pour prévoir comment varie l'intensité globale de la luminescence émise en fonction de l'énergie de l'ion absorbé dans un gaz rare donné.

Des expériences ont été réalisées par Nobles [21] dans le cas de l'excitation du xénon par les protons, les deutons et les rayons  $\alpha$  d'énergie 2 à 5 MeV. Il constate que l'intensité lumineuse émise ne dépend pas de la perte spécifique d'énergie de l'ion incident et varie linéairement avec l'énergie totale cédée au gaz; mais la droite obtenue, au lieu de passer par l'origine, coupe l'axe des énergies à 0,5 MeV ce qui est probablement dû à une erreur systématique dans la définition de l'énergie des ions utilisés.

Il est intéressant de rappeler les causes de la variation non linéaire de la fluorescence spécifique

$\frac{dS}{dx}$  en fonction de la perte spécifique d'énergie  $\frac{dE}{dx}$  de la particule nucléaire dans les scintillateurs les plus couramment utilisés à l'heure actuelle, qui sont des solides minéraux et organiques.

La théorie de cet effet a été proposée par J.B. Birks en 1953 [63]. Elle est basée sur les observations suivantes :

1/ la fluorescence spécifique  $\frac{dS}{dx}$  décroît lorsque le scintillateur a été auparavant irradié par des flux intenses de particules  $\alpha$  ou d'électrons. On peut en déduire que les chocs inélastiques ont créé une rupture des liaisons à courte distance dans le solide et que ces défauts de structure ont une grande probabilité d'absorption des photons primaires émis.

2/ l'énergie d'excitation laissée sur son passage par la particule primaire est transmise à des distances de la "colonne d'ionisation" atteignant quelques mm et passe à travers un écran de verre ce qui impose bien un transfert d'énergie par les photons.

3/ ces photons issus de l'atome excité, auront d'autant plus de chance de parvenir à l'observateur que la densité de défauts absorbants est plus faible dans la sphère de volume élémentaire centrée sur l'atome excité.

Pour les particules très ionisantes la densité de défauts est grande, la probabilité pour qu'un photon sorte de cette sphère est donc petite, c'est le cas par exemple des photons émis par les fragments de fission : on ne récolte qu'un petit nombre de photons émis.

Dans le cas des particules produisant une densité d'ionisation faible, telles que les particules au minimum d'ionisation, la densité des défauts dans la sphère élémentaire sera faible et la probabilité de sortie des photons sera maximum. Les considérations d'ordre géométrique que Birks a déduites des observations citées au 1° et 2° suffisent à expliquer pourquoi dans le cas des gaz il n'y a pas d'effet de saturation de la fluorescence même pour les rayonnements les plus ionisants connus comme les particules de fission au début de leur parcours. En effet, la faible densité du gaz, en première approximation 1 000 fois plus faible que celle des scintillateurs solides que considérerait Birks, entraîne une diminution d'un facteur 1 000 de la densité des défauts absorbants dans le volume élémentaire ; les photons ont donc à priori une probabilité voisine du maximum de sortir de cette sphère élémentaire et on peut s'attendre à ce que la fluorescence spécifique varie linéairement avec la perte spécifique d'énergie de la particule nucléaire dans le scintillateur.

Nous avons effectué la vérification expérimentale en comparant les intensités de fluorescence dans les gaz rares obtenus avec les rayons  $\alpha$  et les fragments de fission, ces derniers étant pris comme particules très ionisantes, et les rayons  $\alpha$  étant ici considérés comme des particules relativement peu ionisantes.

#### Dispositif expérimental.

La source de matériau fissile, d'où sortiront les particules de fission, est un dépôt mince d'oxyde d'uranium enrichi à 46 %, d'épaisseur équivalente  $15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Elle est placée dans un tube de quartz rempli de xénon à la pression de 740 mm Hg.

La surface de cette source est  $12 \text{ cm}^2$  et elle émet les groupes de rayons  $\alpha$  suivants :  $U_{238}$  (4,18 MeV) 0,2 % ;  $U_{234}$  (4,76 MeV) 53,8 % ;  $U_{235}$  (4,52 MeV) 46 % ; le nombre total de rayons  $\alpha$  émis est de 135 par seconde et par  $2 \pi$ . L'enrichissement isotopique d'un facteur 65,7 dans le cas de  $U_{235}$  s'est accompagné d'un enrichissement isotopique de 33 fois en  $U_{234}$  ; l'énergie moyenne correspondante est  $E_\alpha = 4,66 \text{ MeV}$ .

Les mesures concernant l'émission de lumière due aux particules de fission, ont été effectuées en utilisant la colonne thermique du réacteur nucléaire EL. 2. La cible est placée à 10 cm du plan de sortie d'un canal ouvert. Le flux de neutrons thermiques mesuré avec un étalon de manganèse est de  $3,10^5 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  (pour une puissance thermique du réacteur de 2000 kW).

Le photomultiplicateur utilisé est du type E.M.I. 6255 à fenêtre de quartz, qui fonctionnait avec un gain de  $4,10^6$ , 10 dynodes seulement étant utilisées.

Le dispositif de mesure comprend :

- un amplificateur du standard C.E.A. (ABV 10), qui fonctionnait avec un gain de 400 lorsqu'on mesurait l'émission de lumière due aux rayons  $\alpha$  et un gain de 40 lorsqu'on mesurait l'émission de lumière due aux fragments de fission.

- un ensemble sélecteur à 1 bande et échelle de comptage, type SA1C du standard C.E.A.

L'ensemble amplificateur, sélecteur à une bande est linéaire à 2 % près.

## Résultats

Ils sont représentés sur la figure 30 où l'on a porté en abscisses l'énergie des particules et en ordonnées l'amplitude de l'impulsion de lumière obtenue pour les particules  $\alpha$  de  $U_{238}$ ,  $U_{234}$  et  $U_{235}$  d'une part, et pour les particules de fission d'autre part.

Les trois pics  $\alpha$  sont confondus en un seul, fort étroit ( $\pm 0,2$  MeV) étant donné l'échelle. Les particules de fission donnent deux pics, l'un relatif aux particules lourdes, l'autre aux particules légères.

Ces deux pics empiètent l'un sur l'autre et donnent un pseudo-pic ayant une largeur à mi-hauteur de 30 MeV environ (la largeur théorique à mi-hauteur est 25 MeV). On a réuni dans le tableau ci-après les valeurs de l'énergie moyenne des rayons  $\alpha$ , des énergies les plus probables  $E_F$  et  $E_f$  des fragments

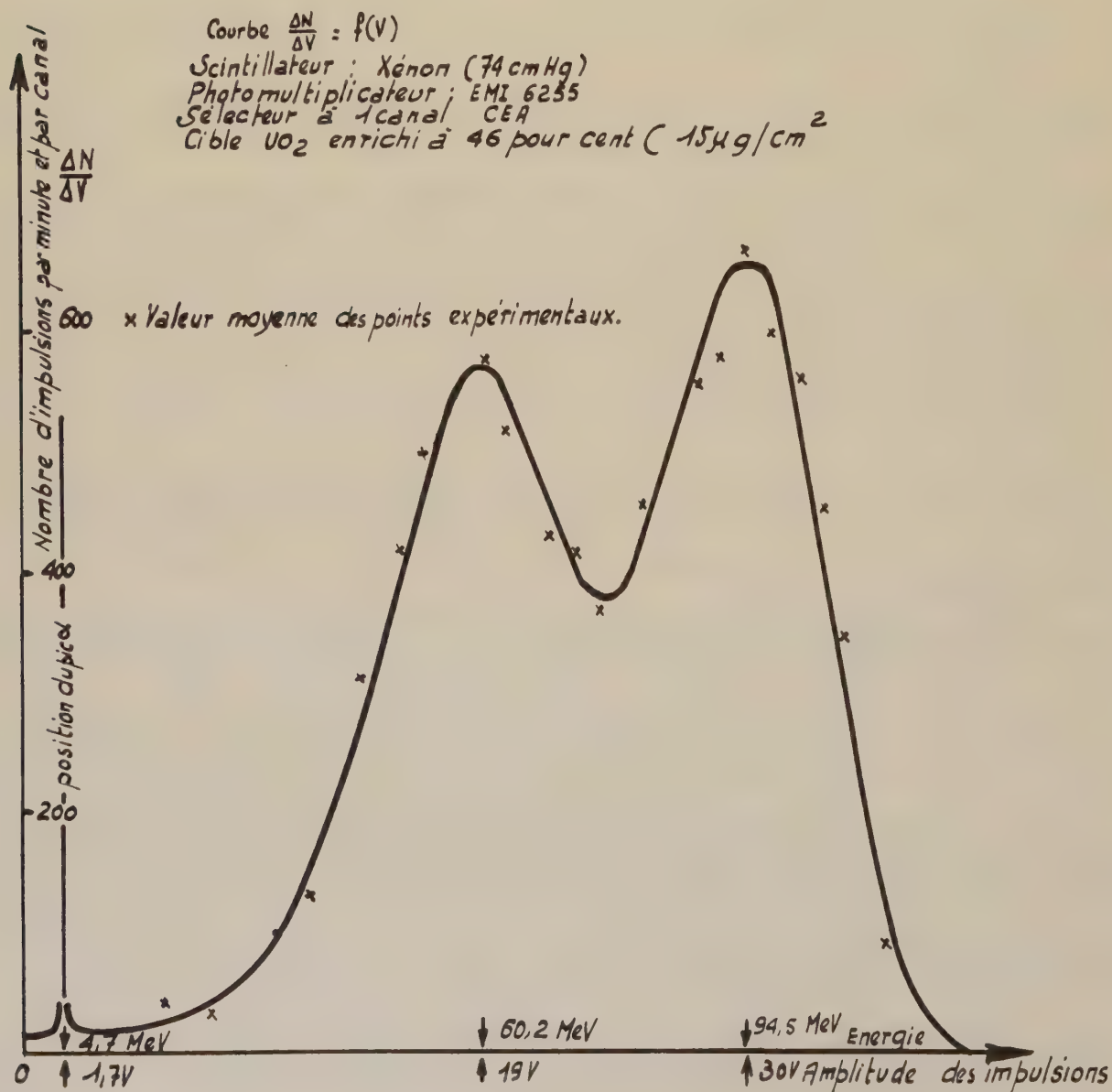


Figure 30 - Réponse d'un scintillateur gazeux aux produits de fission de l'uranium 235.

de fission données par Whitehouse [70], ainsi que les rapports de chacune de ces énergies les plus probables à l'énergie moyenne des rayons  $\alpha$ . La précision sur ces chiffres est de 0,5 %.

On a indiqué ensuite les amplitudes en volts mesurées à la sortie de l'amplificateur et correspondant au pic  $\alpha$  et à chacun des pics dûs aux fragments de fission.

Tableau XV

Valeurs théoriques des rapports d'énergies entre fragments de fission et rayons  $\alpha$  de l'uranium ; valeurs expérimentales obtenues avec le xénon comme scintillateur

|                       | $E_\alpha$                   | $E_f$          | $E_t$          | $\frac{E_f}{E_\alpha}$ | $\frac{E_t}{E_\alpha}$ | $\frac{E_t}{E_f}$ |
|-----------------------|------------------------------|----------------|----------------|------------------------|------------------------|-------------------|
| Whitehouse            |                              | 60,2 MeV       | 94,5 MeV       | 12,9                   | 20,2                   | 1,57              |
| Expérience avec Xénon | 4,66 MeV<br>$1,7 \pm 0,06$ V | $19 \pm 0,4$ V | $30 \pm 0,6$ V | $11 \pm 0,7$           | $17,6 \pm 1$           | $1,57 \pm 0,03$   |

Le rapport entre les intensités de fluorescence dues aux deux types de fragments de fission est donc égal à 2 % près au rapport de leurs énergies les plus probables ; ceci n'est possible que s'il n'y a aucun effet de saturation dans l'intensité de la fluorescence émise, même lorsque la perte spécifique d'énergie de l'ion atteint 70 MeV/cm comme c'est le cas pour les fragments légers de fission en début de parcours.

Si l'on considère les rapports  $\frac{E_f}{E_\alpha}$  et  $\frac{E_t}{E_\alpha}$  on constate que la variation linéaire de la fluorescence émise en fonction de l'énergie cédée au gaz n'est réalisée qu'à 15 % près. Deux raisons peuvent être à l'origine de cet écart.

1/ La répartition de la lumière émise le long de la trajectoire est très différente selon qu'il s'agit de rayons  $\alpha$  ou de produits de fission. Pour ces derniers les interactions électroniques sont très importantes en début de parcours contrairement au cas des rayons  $\alpha$  ; si l'on remplace la source lumineuse linéaire correspondante par une source ponctuelle équivalente, les sources lumineuses ponctuelles équivalentes aux deux sortes de trajectoires sont situées à des distances différentes de la photocathode, distance plus grande dans le cas des fragments de fission ; le coefficient de collection des photons émis est donc plus faible dans le cas des fragments de fission, ce qui tend à diminuer le rapport  $\frac{E_t}{E_\alpha}$ .

Un calcul approximatif de l'erreur peut être effectué avec les données suivantes :

- distance cible-photocathode : 25 mm
- coefficient de réflexion des parois :  $r = 0,9$

La distance des sources ponctuelles équivalentes, déduite des courbes donnant l'ionisation spécifique en fonction du parcours est de 5 mm environ. Il s'ensuit une variation de 20 % dans l'angle solide sous lequel chacune de ces sources ponctuelles voit la photocathode.

On en déduit une variation de 12 % dans le coefficient de collection des photons pour une paroi dont le coefficient de réflexion est 0,9. On retrouve donc, en faisant cette hypothèse, la diminution du facteur  $\frac{E_t}{E_\alpha}$  constatée expérimentalement.

2/ La longueur d'onde moyenne de l'émission lumineuse n'est probablement pas la même dans les deux cas ce qui rend difficile une évaluation plus exacte des fluctuations dont l'origine a été exposée dans le paragraphe précédent.

L'écart de 15 % observé entre les rapports théoriques et expérimentaux des énergies des fragments de fission et des rayons  $\alpha$  est donc bien d'origine expérimentale (coefficient différent de collection des photons) et non dû à une saturation du scintillateur.

En conclusion on a bien, avec une précision meilleure que quelques %, proportionnalité de la luminescence à l'énergie totale perdue par la particule nucléaire dans le gaz et ceci dans un très grand domaine d'énergie et pour les particules nucléaires dont la perte spécifique d'énergie est la plus élevée. Ceci constitue l'une des propriétés les plus remarquables des scintillateurs gazeux.

#### 5-2-4. Variation de l'émission lumineuse en fonction de l'énergie cédée au gaz en présence d'un champ électrique

Les considérations théoriques indiquées au paragraphe 5-2-3 amènent à penser qu'il n'y aura pas non plus de "saturation" si l'on multiplie la quantité de lumière produite par l'action d'un champ électrique. C'est bien ce que l'on constate expérimentalement.

La mesure a été effectuée avec une source de rayons  $\alpha$  canalisés, placée à distance variable du domaine où s'exerce le champ électrique.

Un champ continu de  $1430 \text{ V.cm}^{-1}$  a été appliqué au xénon ce qui donnait dans ce cas un coefficient de multiplication de la luminescence égal à 17 (le tube contenant une source de polonium n'avait pu être étuvé et le coefficient de multiplication obtenu est plus faible qu'avec un gaz pur).

Les résultats expérimentaux sont représentés sur la figure 31, ils correspondent à une énergie des rayons  $\alpha$  variant entre 1 et 4 MeV.

On constate que l'émission lumineuse reste proportionnelle à l'énergie cédée au gaz lorsque celui-ci est soumis à un champ électrique continu et uniforme tel que le nombre de photons résultant de l'excitation du gaz par la particule nucléaire incidente soit multiplié par un facteur de l'ordre de 20. On pourra donc utiliser ce phénomène de multiplication de photons tout en gardant l'avantage essentiel du scintillateur gazeux qui est la variation linéaire de la fluorescence en fonction de l'énergie cédée au gaz.

#### 5-3. RESOLUTION EN ENERGIE.

C'est la largeur à mi-hauteur de la distribution des amplitudes obtenues sur l'anode du photomultiplicateur lorsque des particules monocinétiques perdent toute leur énergie dans le scintillateur.

Les trois sources principales de mauvaise résolution dans un détecteur à scintillation sont : les fluctuations de la collection des photons par la photocathode, l'émission thermoélectronique de celle-ci et les fluctuations de gain dans l'ensemble des dynodes.

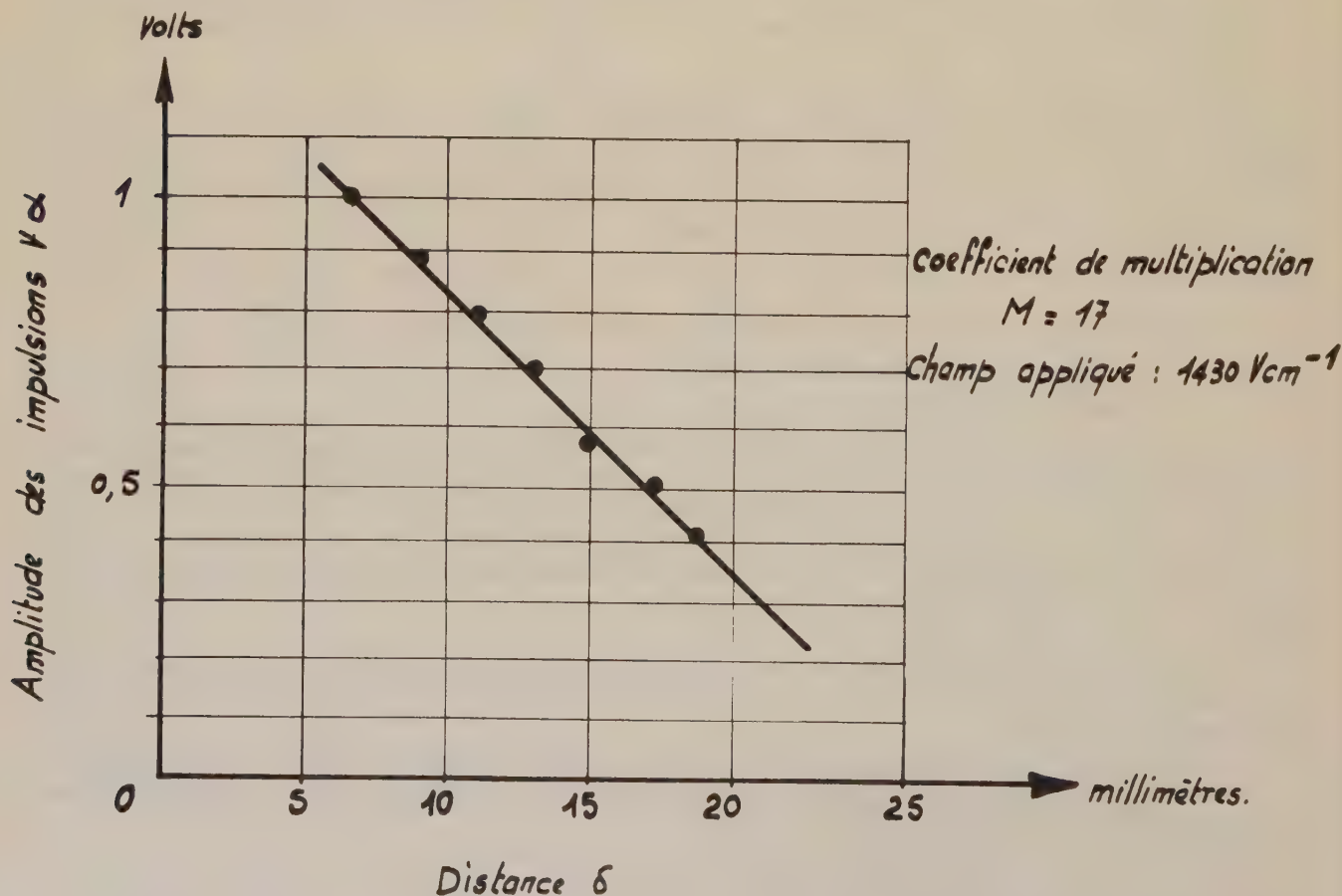


Figure 31 - Variation de l'amplitude des impulsions avec l'énergie perdue par les particules  $\alpha$  dans le xénon en présence d'un champ électrique uniforme.

En général, les deux premières causes de fluctuations sont négligeables (lorsque les impulsions de lumière données par le scintillateur ne sont pas trop petites), comparées aux fluctuations statistiques de gain dans le photomultiplicateur lui-même [69].

Le carré moyen des fluctuations sur le nombre d'électrons reçus par l'anode s'écrit :

$$\frac{\Delta Z^2}{Z^2} = \frac{1}{\delta} \frac{\sigma}{\sigma - 1} \quad (26)$$

$\delta$  est le nombre d'électrons émis par la photocathode à chaque scintillation.

$\sigma$  est le coefficient de multiplication secondaire, égal à 4 environ.

d'où :

$$\frac{\Delta Z^2}{Z^2} = \frac{4}{3} \frac{1}{\delta} \quad (27)$$

La distribution des impulsions obtenues est très approximativement gaussienne si  $\delta$  est grand. La largeur à mi-hauteur de la distribution est 2,36 fois l'écart quadratique moyen. Donc si  $A$  est l'amplitude moyenne des impulsions obtenues, la largeur à mi-hauteur exprimée en pour cent est :

$$\frac{\Delta \bar{A}}{\bar{A}} = 2,36 \sqrt{\frac{1,33}{\delta}}$$

Donc avec un scintillateur gazeux tel le mélange Argon +  $5 \cdot 10^{-2}$  Azote pour lequel  $\delta = 630$  on a une résolution de l'ordre de 10 % à 5 MeV, c'est bien ce que nous avons trouvé expérimentalement ; avec un convertisseur de lumière et en purifiant le gaz constamment on pourra obtenir une résolution de 4 % à 5 MeV avec le xénon. Par exemple C.S. Wu a trouvé avec l'ensemble xénon-quaterphenyl une résolution de 4,8 % pour les rayons  $\alpha$  du polonium [22].

Ces résolutions en énergie sont évidemment moins bonnes que celles obtenues avec les chambres d'ionisation mais le temps de résolution plus court et la grande facilité d'adaptation du détecteur rendent ces performances intéressantes.

D'autre part, l'application d'un champ électrique puisqu'il augmente le nombre de photoélectrons collectés par scintillation permet d'augmenter la résolution comme on le voit sur la figure 32.

On a analysé avec un spectrographe C.E.A. type SGE1 le spectre d'amplitude des impulsions obtenues lorsqu'un champ électrique est appliqué perpendiculairement à la trajectoire des rayons  $\alpha$  dans le gaz. La mauvaise géométrie du système d'irradiation utilisé et l'absence de réflecteur sur les parois du tube expliquent la faible résolution en énergie obtenue ici.

Aux deux parties de l'impulsion représentées sur la figure 27 correspondent deux pics de la courbe  $\frac{dN}{dE} = f(E)$ . A mesure que le champ électrique croît le second pic se déplace vers les énergies élevées tandis que sa résolution en énergie s'améliore.

L'amélioration de la résolution est moins rapide que ne le laisse prévoir la formule (26) ce qui tend à prouver que les fluctuations dans le nombre de photons par scintillation atteignant la photocathode ne sont pas négligeables dans ce montage expérimental ; ceci est dû principalement à la canalisation insuffisante des particules  $\alpha$  dans l'espace soumis au champ électrique.

#### 5-4. RENDEMENT QUANTIQUE.

On appelle rendement quantique le rapport entre le nombre de particules effectivement détectées et le nombre total de particules atteignant le détecteur.

Les mesures effectuées ont montré que dans le cas des rayons  $\alpha$  le rendement quantique est égal à 100 % ; pour les produits de fission avec une cible d'épaisseur équivalente  $15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ , il est aussi égal à 100 %.

Les faisceaux d'ions ou de neutrons étant toujours accompagnés de rayons  $\gamma$ , il est intéressant d'étudier la sensibilité de l'ensemble scintillateur-photomultiplicateur au rayonnement  $\gamma$ , l'empilement d'un nombre suffisant d'impulsions provenant des rayons  $\gamma$  pouvant réduire le rendement quantique de détection des ions.

De même, l'empilement d'un nombre suffisant d'impulsions provenant de rayons  $\alpha$  d'un matériau fissile tel le plutonium, pourra réduire le rendement quantique de détection des produits de fission en imposant un seuil de discrimination trop élevé.

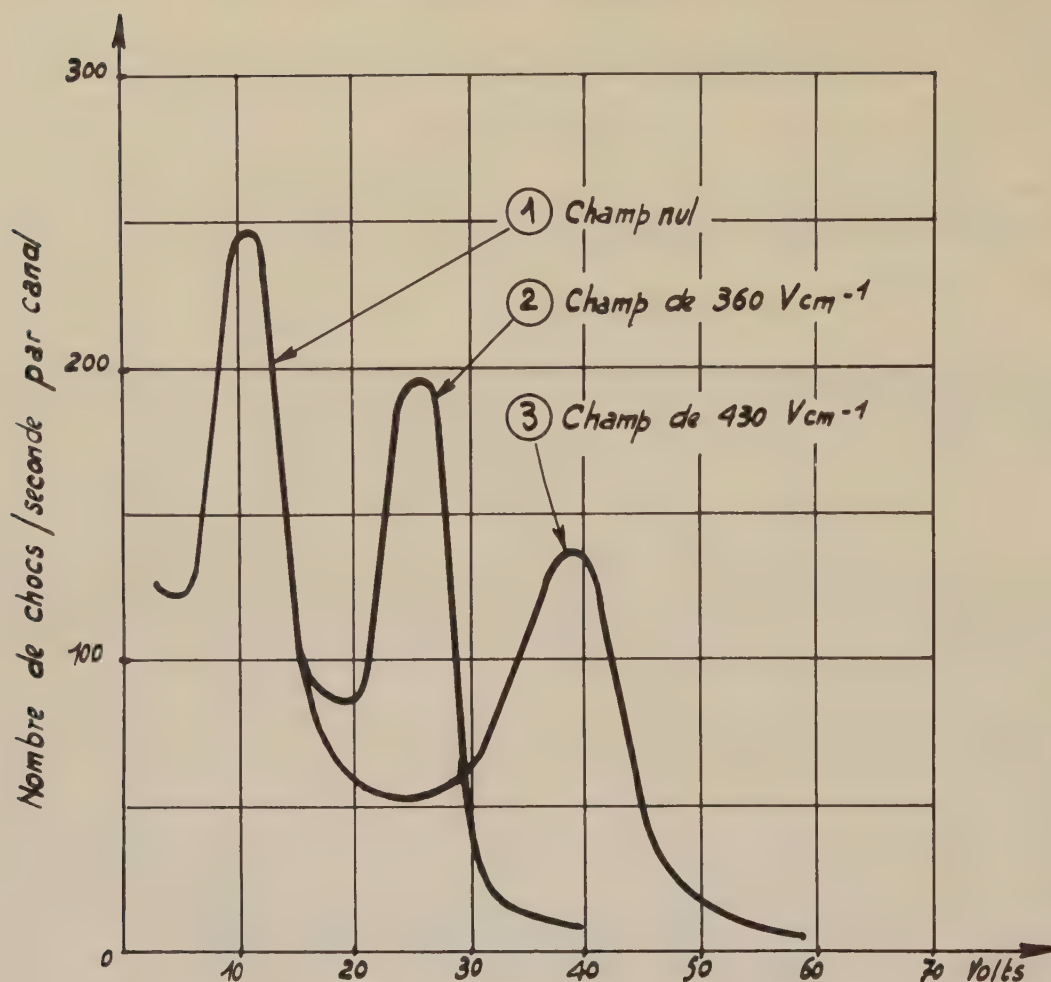


Figure 32 - Spectres « obtenus dans le xénon en présence d'un champ électrique uniforme.

#### 5-4-1. Données théoriques concernant les empilements.

L'empilement des impulsions de faible amplitude provenant de rayonnements parasites de faible énergie mais de forte intensité est un problème très général en physique nucléaire ; il constitue la limite physique d'emploi de la plupart des détecteurs (chambres à fission, scintillateurs constitués de solides organiques pour la détection des neutrons rapides, etc.).

Soit  $n_0$  la fréquence moyenne des impulsions parasites qui vont s'empiler (on suppose ces impulsions rectangulaires).

Soit  $\tau$  le temps de résolution de l'ensemble constitué par le détecteur de particules et le dispositif électronique d'amplification ou de comptage. Le nombre moyen d'événements survenant pendant le temps  $\tau$  est  $n_0 \tau$ .

D'après Rossi [65], le nombre d'empilements d'ordre  $n$  est :

$$C_n = \frac{n_0}{n_0 \tau + 1} \frac{(n_0 \tau)^{n-1}}{(n-1)!} e^{-n_0 \tau} \quad (28)$$

Cette fonction décroît très vite avec  $n$  ; elle donne un renseignement par excès, car les impulsions sont exponentielles en général. Pour  $n$  assez grand,  $C_n$  varie exponentiellement avec  $n$  et donc décroît exponentiellement avec le seuil de discrimination du dispositif électronique de mesure. En effet :

$$C_n \propto \frac{a^{n-1}}{(n-1)!} \text{ en posant } n_0 \tau = a \quad (29)$$

Tracer la courbe de discrimination d'amplitude des impulsions obtenues pour  $n$  grand, signifie porter en fonction de  $x$ , l'expression  $\sum_{n \geq x} C_n$  ce qui représente bien le développement d'une exponentielle.

En fait, dès que  $n_0 \tau$  est supérieur à  $10^{-2}$  l'étude expérimentale est indispensable, spécialement dans le cas de l'empilement provoqué par le rayonnement  $\gamma$ , car à la fois  $n$  et l'amplitude de l'impulsion correspondant à l'absorption d'un rayon  $\gamma$  ne pourront être connus avec précision.

#### 5-4-2. Etude de la sensibilité aux rayons $\gamma$ de l'ensemble scintillateur-photomultiplicateur.

Les principaux processus déterminant une sensibilité aux rayons  $\gamma$  sont les suivants :

1/ *Effet photoélectrique et effet Compton dans le support de la photocathode.*

D'après Koechlin et Pelkovitch [66], un rayon  $\gamma$  de 1 MeV arrêté dans le verre supportant la photocathode d'un photomultiplicateur donne 4 photoélectrons. La probabilité d'absorption de ce rayon  $\gamma$  par une épaisseur de verre de 3 mm est  $4 \cdot 10^{-2}$ .

2/ *Effet Cerenkov dans le verre.*

Soit 0,7 MeV l'énergie moyenne des rayons  $\beta$  provenant de l'arrêt des rayons  $\gamma$  dans le verre. Les rayons  $\beta$  ont dans le verre un parcours équivalent de  $250 \text{ mg/cm}^2$ , soit 0,8 mm.

Or, ils donnent par effet Cerenkov 260 photons par cm ; donc pour un rayon  $\gamma$ , on aura :

$$260 \cdot 4 \cdot 10^{-2} \cdot 0,08 \approx 0,8 \text{ photon.}$$

Cet effet est donc négligeable devant le précédent.

3/ *Excitation du gaz par les rayons  $\beta$  dûs aux rayons  $\gamma$  arrêtés dans les parois du scintillateur.*

Le coefficient d'absorption du xénon pour les rayons  $\gamma$  de 1 MeV est :

$$\mu = \sigma N = 5,6 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$$

d'où la probabilité d'interaction en 3 cm :  $A = 17 \cdot 10^{-4}$ .

C'est donc bien l'arrêt des rayons  $\gamma$  par les parois, indiqué ci-dessus au 1°, qui est l'effet prédominant pour produire des rayons  $\beta$  dans le gaz scintillateur.

Soit donc un rayon  $\beta$  d'énergie moyenne 0,7 MeV provenant de l'interaction d'un rayon  $\gamma$  avec les parois. Son parcours est de 68 cm dans le xénon à la pression de 740 mm de mercure.

L'énergie moyenne cédée au gaz sur 3 cm est 30 keV ; le nombre de photoélectrons correspondants partant de la photocathode est égal à 2,4.

Ce chiffre est inférieur à celui trouvé dans le premier paragraphe : c'est donc l'effet photoélectrique et l'effet Compton dans le support de la photocathode qui sont en fin de compte prédominants.

#### Etude expérimentale.

Deux ampoules contenant du xénon, identiques à celle décrite au paragraphe 5-2-3 sont utilisées ; seule la seconde contient une cible d'uranium. Le photomultiplicateur est du type Dario 51 UVP.

Les impulsions sont envoyées par l'intermédiaire d'un câble adapté de 12 mètres, d'impédance caractéristique  $150 \Omega$ , à l'entrée d'un amplificateur ABV 10.

La discrimination est effectuée par un tiroir type TU2 du standard C.E.A. dont le temps de résolution minimum est  $2,5 \mu\text{s}$ .

La source de rayons  $\gamma$  utilisée est constituée par un certain nombre de barres d'uranium irradiées en cours de désactivation dans le hall du réacteur EL. 2. On avait ainsi, à l'endroit où étaient placés le photomultiplicateur et le scintillateur un flux de rayons  $\gamma$  voisin de 1450 Roentgen/heure, c'est-à-dire du même ordre de grandeur que celui que donnerait une source de  $\text{Co}^{60}$  de 1500 curies placée à 1 m de distance.

On a tracé les courbes de discrimination des impulsions provenant de l'empilement des rayons  $\gamma$ , le photomultiplicateur étant d'abord seul, puis regardant l'ampoule scintillatrice n° 2. Aucune différence n'a pu être établie entre les deux courbes de discrimination ; le gaz contribue donc de manière négligeable à la sensibilité de l'ensemble aux rayons  $\gamma$ , ce qui confirme ce qui a été prévu plus haut.

Sur la figure 33 on voit les courbes de discrimination obtenues ; ce sont des droites, comme le prévoit la théorie simple concernant les empilements.

La courbe de discrimination des produits de fission a été tracée ensuite devant la colonne thermique du réacteur EL.2.

Pour un nombre total de fissions voisin de  $10^3$  par minute, le rendement quantique de détection des produits de fission est encore 90 % en présence d'un flux de rayons  $\gamma$  de 1450 Roentgen/heure.

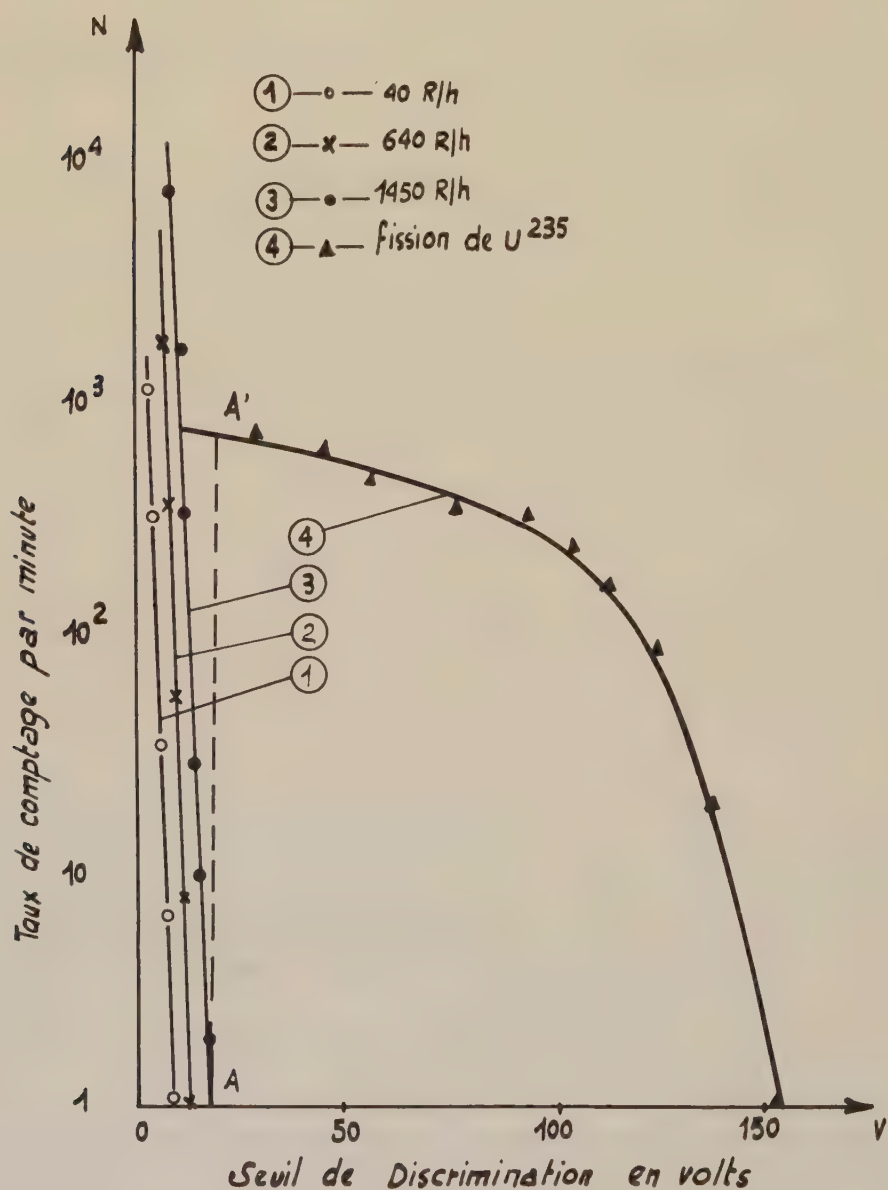


Figure 33 - Discrimination d'amplitude des impulsions provenant :  
a) de l'action des rayons  $\gamma$  sur un photomultiplicateur ; b) de l'arrêt des produits de fission de l'uranium-235 dans un scintillateur gazeux placé devant le même photomultiplicateur 51 UVP.

Le flux de rayons  $\gamma$  correspondant à 1 Roentgen/heure est dans l'air :

$$\phi = \frac{5,6 \cdot 10^5}{E} \text{ photons/cm}^2 \cdot \text{s} \quad (30)$$

où E est l'énergie du rayon  $\gamma$  en MeV [62].

Donc 1 450 R/h correspondent à  $8,1 \cdot 10^8$  photons de 1 MeV par  $\text{cm}^2$  et par seconde.

On a donc ici :

$$n_0 = 8,1 \cdot 10^8 \times S \times p = 3 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$$

S : surface de la photocathode ;

p : probabilité d'absorption d'un rayon  $\gamma$  de 1 MeV dans le support de la photocathode.

$$n_0 \tau = 7,5 \cdot 10^2$$

Le nombre moyen d'événements susceptibles de s'empiler pendant la durée  $\tau$  est donc 750 et le rapport entre le nombre moyen de photoélectrons correspondant à un fragment de fission et à un rayon  $\gamma$  est :

$$\frac{\delta_\alpha \frac{\overline{E_f}}{E_\alpha}}{\delta_\gamma} = \frac{400 \times 15}{4} = 1\,500$$

$\delta_\alpha$  et  $\delta_\gamma$  sont les nombres moyens de photoélectrons émis par une photocathode à support de quartz lorsqu'un rayon  $\alpha$  de  $U_{234}$  et un rayon  $\gamma$  de 1 MeV sont absorbés dans le xénon.

Le calcul montre que dans ces conditions l'empilement donnant des impulsions d'amplitude égale au niveau moyen des impulsions de fission est encore négligeable.

En diminuant le temps de résolution du dispositif de mesure on peut diminuer encore la sensibilité aux rayons  $\gamma$ .

Par exemple avec un dispositif dont le temps de résolution est  $10^{-8}$  s, dispositif que nous décrivons dans le chapitre suivant, on devrait pouvoir discriminer les fissions en présence d'un flux  $\gamma$  250 fois plus important. C'est alors le courant moyen du photomultiplicateur qui limitera la mesure par suite de la saturation des derniers étages du multiplicateur.

Ce courant moyen ne doit pas dépasser 500  $\mu\text{A}$  dans le cas du photomultiplicateur 51 UVP si l'on veut éviter la saturation.

Le flux  $\gamma$  maximum avec un gain de  $10^6$  est alors :

$$\phi_m = 2\,000 \text{ R/h}$$

à peine supérieur à celui que l'on détecte avec un temps de résolution de 2,5  $\mu\text{s}$ .

Un temps de résolution inférieur à 1  $\mu\text{s}$  est donc inutile pour discriminer les fissions des rayons  $\gamma$  tant que le taux de comptage désiré ne dépasse pas quelques  $10^4$  impulsions par seconde pour la fission, de façon que les pertes du comptage soient négligeables.

Le fait que le scintillateur lui-même est très peu sensible aux rayons  $\gamma$  est très intéressant pratiquement puisqu'on peut par ce moyen mesurer des flux de neutrons en présence de flux intenses de rayons  $\gamma$ . On peut même espérer mesurer des flux de neutrons en présence de flux  $\gamma$  encore plus grands, comme ceux qui règnent dans les canaux des réacteurs nucléaires, par exemple, en adaptant un conduit de lumière entre le scintillateur et le photomultiplicateur de manière à ramener le flux  $\gamma$  à un niveau acceptable par le photomultiplicateur.

L'ensemble des propriétés des scintillateurs gazeux que nous venons d'examiner les rendent précieux pour la détection des ions lourds et des neutrons en physique nucléaire, car ils permettent de résoudre certains problèmes difficilement solubles en utilisant les détecteurs classiques de particules, c'est ce que nous allons examiner maintenant.



## VI

### APPLICATION DES SCINTILLATEURS GAZEUX A LA DÉTECTION DES PARTICULES NUCLÉAIRES

Les différentes applications des scintillateurs gazeux résultent de leurs caractéristiques essentielles :

- durée de luminescence très courte ;
- intensité de luminescence proportionnelle à l'énergie cédée au gaz par la particule nucléaire qui le traverse, quelle que soit la perte spécifique d'énergie de celle-ci.

De plus, nous avons vu que la possibilité de multiplication des photons émis sous l'influence d'un champ électrique faible, permet d'obtenir un rendement de scintillation supérieur à celui des scintillateurs solides classiques : ceci est réalisé en conservant toujours une fraction des photons émis en un temps très court, inférieur ou égal à  $2,5 \cdot 10^{-9}$  s, ce qui dans certains cas présente un grand intérêt. La partie de l'impulsion à front raide peut, par exemple, déclencher un circuit électronique rapide donnant l'information de l'instant de passage de la particule, tandis que l'information "énergie de la particule" est enregistrée sur une seconde voie plus lente.

#### 6-1. DETECTION DES IONS LOURDS.

La détection et la mesure d'énergie des ions de grande énergie pourra se faire en présence d'un flux important de particules d'énergie ou d'ionisation spécifique plus faible ; c'est le cas des ions de fission et des rayons  $\alpha$ , des protons et des électrons, une fraction faible du parcours de ces derniers étant contenue dans le gaz.

Dans le cas de l'étude de la fission spontanée par exemple, la précision de la mesure de période de fission est limitée par l'empilement des impulsions dues aux rayons  $\alpha$  pendant le temps que doit durer la mesure pour obtenir une précision statistique suffisante sur le nombre d'événements enregistrés. Or l'utilisation d'un scintillateur gazeux doit permettre d'obtenir des temps de résolution 100 fois plus faibles que ceux qu'on obtient avec les chambres à fission conventionnelles soit  $\tau = 5 \cdot 10^{-9}$  s.

Si le temps de résolution est 100 fois plus faible, toutes choses égales par ailleurs, on pourra admettre une fréquence moyenne  $n$  des impulsions dues aux rayons  $\alpha$ , 100 fois plus grande. Le nombre d'événements enregistrés sera donc 100 fois plus grand et la précision obtenue 10 fois supérieure.

Ceci a permis d'étudier la fission spontanée des transuraniens dont les périodes de désintégration  $\alpha$  sont courtes : c'est le cas par exemple de l'Americium 241 dont 1 mg émet  $10^8$  particules  $\alpha$  par seconde.

Ceci a permis également d'étudier avec une précision accrue les résonances dans la section efficace de fission neutronique des transuraniens. Par exemple L. Bollinger [71] a présenté à la Deuxième Conférence Internationale de Genève une étude sur la fission du plutonium  $^{239}$  : les fragments de fission étaient détectés par leur scintillation dans un mélange argon-azote.

Le temps de résolution de  $5 \cdot 10^{-9}$  s lui a permis d'utiliser 120 mg de plutonium dans la chambre à scintillation ce qui correspond à une émission de  $3 \cdot 10^8$  rayons  $\alpha$  par seconde.

L'utilisation d'un photomultiplicateur rapide donnant de grandes valeurs du courant instantané d'anode évite l'emploi d'un amplificateur : le discriminateur peut être placé directement à la sortie du photomultiplicateur.

Ce discriminateur est particulièrement simple si le taux de comptage désiré est faible, inférieur à 10 impulsions par seconde. Un tel dispositif a été réalisé et essayé au laboratoire. Pour cela on envoyait sur le discriminateur des impulsions d'amplitude  $A_0$  et de fréquence  $f_0 = 50 \cdot H_z$  et des impulsions d'amplitude  $\frac{A_0}{10}$  et de fréquence  $f = 2 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ . Ces dernières impulsions provenaient de l'excitation du xénon

par une source de polonium mince placée à l'extérieur du tube devant une fenêtre de mica mince ; les impulsions de grande amplitude simulant les scintillations dues aux fragments de fission, étaient produites par un générateur d'éclairs lumineux brefs (\*).

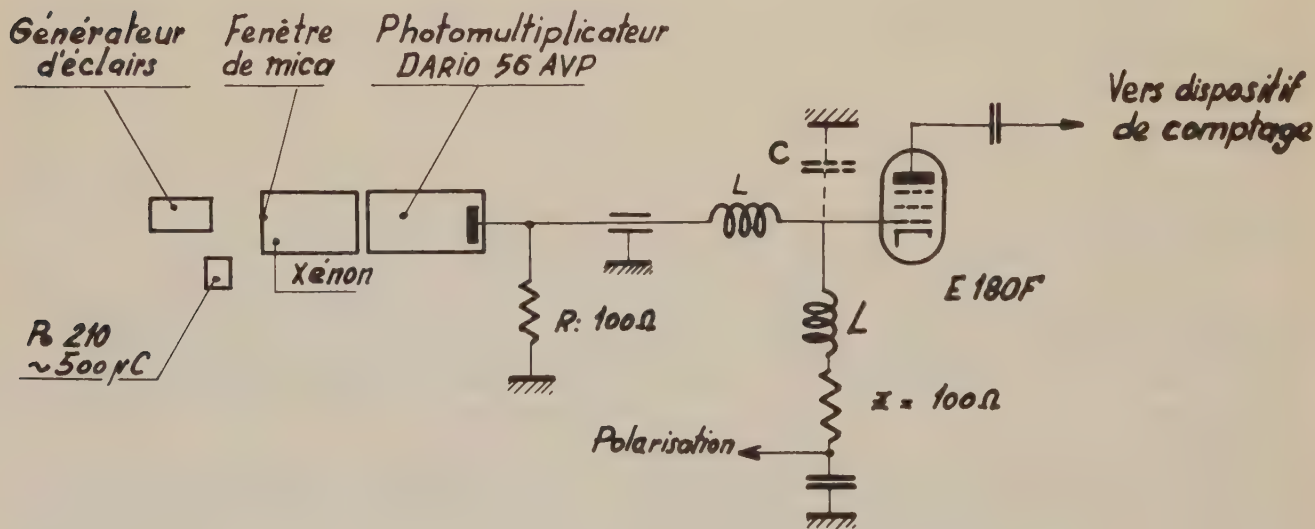
Ce générateur mis au point par Y. Koechlin est constitué d'une bille d'acier oscillant dans l'air entre deux billes formant les extrémités de lignes coaxiales dont l'une est reliée à une source de tension de quelques milliers de volts. Les étincelles apparaissant entre la bille mobile et chacune des deux billes ont une durée de  $10^{-9}$  s environ.

Le schéma de principe du détecteur et du discriminateur est représenté sur la figure 34. Les impulsions de grande amplitude sont comptées avec un rendement de 100 %, aucun empilement dû aux impulsions de faible amplitude n'étant visible. Ce principe de mesure sera utilisé à Saclay pour l'étude de la fission binaire et ternaire des transuraniens.

## 6-2. DETECTION DES NEUTRONS THERMIQUES.

L'ensemble scintillateur gazeux et cible de matériau fissile constitue un détecteur de neutrons thermiques à faible temps de résolution. Ses principales caractéristiques sont les suivantes :

- temps de résolution :  $3 \cdot 10^{-9}$  s
- rendement  $10^{-2}$  soit 1 impulsion par seconde dans un flux de  $10^2$  neutrons par  $\text{cm}^2$  et par seconde avec un dépôt fissile de  $25 \text{ cm}^2$  d'uranium enrichi à 90 % en  $\text{U}_{235}$  et d'épaisseur équivalente  $400 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ .
- sensibilité négligeable aux rayons  $\gamma$  jusqu'à 1 000 Roentgens/heure.
- information fournie sous forme d'impulsions de grande amplitude (quelques dizaines de volts) donc pouvant être transmise à distance et enregistrée facilement.



$$\text{Fréquence de coupure: } f_c = \frac{1}{2\pi\sqrt{L \cdot C}} = 225 \text{ MHz}$$

Figure 34 - Schéma simplifié du discriminateur et du détecteur à scintillation dans le xénon.

(\*) f est donc une fréquence moyenne et  $f_0$  une fréquence vraie.

Un tel détecteur présente sur les chambres à fission conventionnelles l'avantage d'un niveau de sortie des impulsions 1 000 fois plus élevé et d'un temps de résolution 100 fois plus faible. Sa stabilité dans le temps et en fonction de la température est plus faible par suite de la fragilité du photomultiplicateur. On peut envisager cependant pour la mesure des flux de neutrons dans les assemblages critiques ou les réacteurs au moment du démarrage, un détecteur constitué :

- de la cible de matériau fissile
- du scintillateur
- d'un conduit de lumière en quartz par exemple
- du photomultiplicateur
- du discriminateur

Ces deux derniers éléments étant soustraits aux flux intenses de rayons  $\gamma$  et de neutrons rapides.

Un tel dispositif est également prévu dans des expériences de physique où l'on désire étudier un phénomène transitoire tout en ayant des fluctuations statistiques très faibles sur le nombre d'événements enregistré. C'est le cas des études de cinétique d'une pile atomique effectuées par la méthode d'oscillation sinusoïdale d'un échantillon absorbant dans le réseau des barres ; ces oscillations produisent une modulation non sinusoïdale du flux neutronique qui est analysée.

L'intervalle d'observation est de 1 ms ; pour obtenir une précision de 1 % on doit donc avoir  $10^4$  événements pendant cette durée soit un taux de comptage des fragments de fission de  $10^7$  par seconde.

#### Dispositif électronique de mesure.

Outre un photomultiplicateur "rapide" type Dario 56 AVP l'appareillage électronique mis au point par J. Mey (\*) comprend :

- un discriminateur dont le temps de résolution est de  $7 \cdot 10^{-9}$  s, l'impédance d'entrée 200  $\Omega$  et le seuil minima 0,3 V.
- une échelle de 4, divisant par 4 le nombre d'impulsions discriminées et pouvant fonctionner à 100 MHz (temps de résolution  $10^{-8}$  s).
- une échelle de 100 pouvant fonctionner à 10 MHz.

Le principe des circuits est celui des amplificateurs distribués : des selfs compensent les capacités parasites des tubes électroniques et forment avec elles l'équivalent d'une ligne coaxiale. Le temps de résolution de l'ensemble constitué du détecteur et du circuit de mesure est  $10^{-8}$  s. (Figure 35).

Les pertes de comptage sont égales à 10 % avec le taux de comptage de  $10^7 \text{ s}^{-1}$  utilisé.

Ce dispositif sera utilisé pour l'étude de la pile atomique Minerve. Seul le scintillateur sera placé dans le réseau de barres par suite des flux intenses de neutrons rapides et de rayons  $\gamma$  présents. Ce

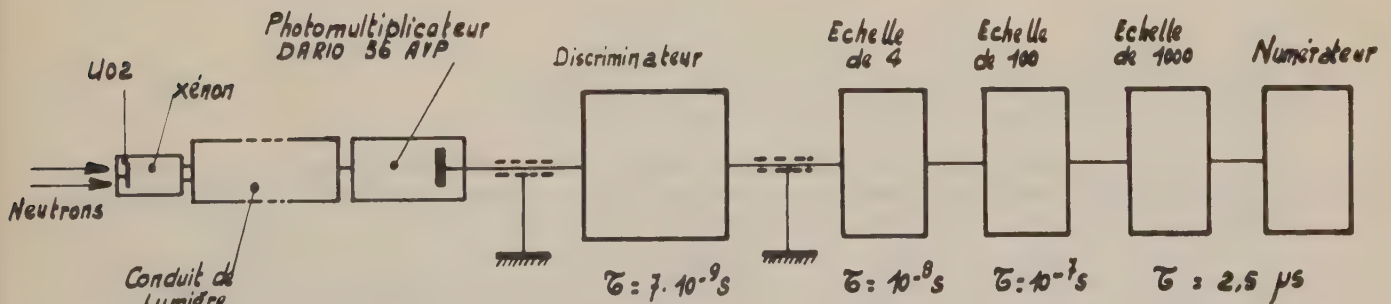


Figure 35 - Détecteur de neutrons à faible temps de résolution ( $10^{-8}$  s).

(\*) Département d'Electronique - Saclay.

détecteur est le seul qui puisse être envisagé à l'heure actuelle pour effectuer de telles mesures par suite de son temps de résolution faible et de l'insensibilité du scintillateur aux rayons  $\gamma$ .

### 6-3. DETECTION DES NEUTRONS RAPIDES.

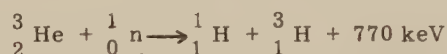
Les propriétés de l'hélium :

- rendement de conversion élevé,
- temps de scintillation réglable entre quelques  $10^{-7}$  et quelques  $10^{-8}$  s selon la quantité de gaz secondaire introduit, laissent prévoir que les mélanges d'hélium 3 et d'un gaz lourd tel le xénon, à haute pression, seraient intéressants pour la spectrographie des neutrons rapides. En effet, d'après Northrop, le mélange hélium-xénon à 10 % de xénon a un rendement de scintillation supérieur de 20 % à celui du xénon pur ; pour 1 MeV absorbé dans le gaz, le nombre de photoélectrons émis par la photocathode serait donc  $\delta = 960$ .

La résolution théorique en énergie exprimée en pour cent est :

$$\frac{\Delta \bar{A}}{\bar{A}} = 2,36 \frac{1,33}{\sqrt{960}} \approx 10 \% \text{ à } 1 \text{ MeV}$$

Ceci est valable pour un tube possédant un réflecteur parfait et à condition de négliger les effets de bords qui limitent la trajectoire des protons et des tritons issus de la réaction :



Les prévisions théoriques de Bachelor [67], faites pour des compteurs à ionisation, permettent de calculer, pour un diamètre donné du scintillateur (ici 5 cm) la pression de gaz nécessaire pour avoir un effet de bord égal à 10 % en fonction de l'énergie du neutron incident.

On obtient les résultats suivants :

Tableau XVI  
Pression de gaz scintillant à utiliser en fonction  
de l'énergie des neutrons incidents

| Energie en MeV | Pression en atmosphères |
|----------------|-------------------------|
| 0,5            | 3,5                     |
| 1              | 6                       |
| 1,5            | 9                       |
| 2              | 13                      |
| 2,5            | 17,5                    |

Le fait d'opérer à pression élevée est doublement avantageux :

- 1/ on diminue la durée de vie moyenne des états excités ;
- 2/ on augmente le rendement de conversion lorsque les gaz sont suffisamment purs pour que l'extinction de la luminescence soit négligeable. Par exemple, dans le cas de l'hélium, Baldin et al. [68] multiplient le rendement par 2 en passant de 20 à 80 atmosphères.

Cette méthode possède, comme le compteur proportionnel à hélium 3, l'inconvénient de donner des résultats peu précis quand le spectre des neutrons incidents est complexe et qu'un certain nombre de neutrons ont une énergie supérieure à 1 MeV ; en effet les atomes d'hélium de recul provenant des collisions élastiques avec les neutrons ont un spectre d'énergie qui s'étend de 0 à  $E = \frac{3}{4} E_n$  où  $E_n$  est l'énergie du neutron incident ; on ne pourra donc pas les distinguer des protons et tritons provenant de l'interaction d'un neutron plus lent avec l'hélium 3.

L'avantage de cette méthode par rapport au compteur proportionnel à  $\text{He}^3$  est la simplicité de réalisation et le temps de résolution plus faible.

En conclusion, cette méthode serait utilisable entre quelques centaines de keV et quelques dizaines de MeV.

## VII

### CONCLUSIONS

Nous nous étions proposé dans la première partie de ce travail de déterminer les niveaux énergétiques excités et les mécanismes de transfert d'énergie à la suite des collisions entre les particules nucléaires chargées et les atomes de gaz rares, dans le but de préciser les caractéristiques de l'émission de lumière qui en résulte.

Le premier moyen d'étude utilisé a été l'analyse spectrale de la fluorescence due à l'excitation des gaz rares par les rayons  $\alpha$  du polonium.

On a montré que les transitions optiques les plus probables dans le cas des modes classiques d'excitation apparaissent également avec une intensité maximum après l'excitation des gaz rares par les rayons  $\alpha$ .

Ces raies, très peu nombreuses, propres aux gaz rares, sont toujours accompagnées des bandes de la molécule d'azote neutre et ionisée et ceci pour une concentration d'azote inférieure à 100 parties par million. Ceci prouve que parmi les impuretés présentes en concentrations équivalentes, l'azote est le gaz pour lequel les probabilités de transfert d'énergie et de réémission, dans le domaine des longueurs d'ondes visibles, sont les plus grandes. L'étude densitométrique des spectres obtenus, en fonction de la concentration d'azote contenue dans le gaz rare, montre de plus l'existence d'un transfert d'énergie entre les niveaux excités de la molécule ionisée d'azote et le mercure, pour une concentration de celui-ci inférieure à 1 partie par million.

L'importance de l'émission lumineuse de l'azote pour des concentrations aussi faibles prouve que celui-ci n'est pas excité directement par la particule incidente mais probablement à partir des niveaux métastables du gaz rare.

Le deuxième moyen d'étude utilisé est la mesure directe des durées de vie des états excités par une méthode oscillographique. Les durées de vie mesurées sont beaucoup plus courtes que celles qu'on peut déduire du calcul de l'élargissement des raies d'émission par effet Doppler par suite du grand nombre de collisions à la pression atmosphérique. On a trouvé par exemple une durée de vie moyenne des niveaux "optiques" inférieure à  $2,25 \cdot 10^{-9}$  seconde dans le cas du xénon.

Les variations de la durée de vie des niveaux métastables, en présence de quantités contrôlées d'azote, ont été mesurées : leur durée de vie apparente diminue quand la concentration d'azote croît ; cela confirme que le transfert d'énergie sur l'azote est effectué à partir des états métastables du gaz rare.

On a montré que l'application d'un champ électrique au gaz permet d'augmenter l'intensité de la fluorescence. L'analyse oscillographique de la forme des impulsions lumineuses obtenues montre que l'excitation supplémentaire est due aux électrons accélérés par le champ (ces derniers ayant d'ailleurs une énergie insuffisante pour ioniser le gaz).

Dans la deuxième partie de ce travail les caractéristiques des gaz rares utilisés comme scintillateurs en physique nucléaire ont été étudiées.

Les rendements de conversion de l'énergie en photons pour les gaz purs et les mélanges ont été mesurés par comparaison avec des scintillateurs connus. En appliquant un champ électrique au gaz les rendements de scintillation obtenus sont supérieurs à ceux des meilleurs scintillateurs solides actuels (INa Tl).

On a montré que l'intensité de la fluorescence était proportionnelle à l'énergie perdue par la particule nucléaire dans le gaz quelle que soit la perte spécifique d'énergie de celle-ci. Les gaz utilisés comme scintillateurs proportionnels pour la mesure d'énergie des particules lourdes présentent donc un énorme avantage sur les solides et les liquides.

Plusieurs études d'application à la physique nucléaire de cet avantage, joint à un temps de scintillation inférieur ou égal à  $2,25 \cdot 10^{-9}$  seconde, ont été entreprises. D'une part on a montré que le rendement quantique de détection des particules résultant de la fission de l'uranium 235, restait voisin de 90 % en présence d'un flux de rayons  $\gamma$  égal à 1 500 Roentgens par heure, ce qui a conduit à une nouvelle technique de mesure des flux de neutrons qui permet d'obtenir des taux de comptage de  $10^7$  impulsions par seconde avec une perte de comptage inférieure à 10 % ; d'autre part l'application à l'étude des sections efficaces de fission spontanée ou provoquée de nuclides ayant une période alpha relativement courte est en cours de développement à l'heure actuelle : on pense reculer d'un facteur 100 les limites de sensibilité précédemment atteintes ; on peut déjà détecter des impulsions ayant une amplitude dix fois plus grande que celle des rayons  $\alpha$  du polonium, au milieu de  $2 \cdot 10^7$  impulsions par seconde dues à ces rayons  $\alpha$ .

Dans ces deux cas les mesures ont montré que le détecteur et l'appareillage électronique associé ont bien un temps de résolution inférieur à  $10^{-8}$  seconde.

Enfin les possibilités de mesure d'énergie des particules lourdes, la détection des neutrons lents avec un temps de résolution égal à  $10^{-9}$  seconde et la spectroscopie des neutrons rapides d'énergie comprise entre 0,5 MeV et 10 MeV ont été successivement analysées.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] M. CURIE - Radioactivité - Hermann, Paris (1935).
- [2] W. HUGGINS - Proc. Phys. Soc. A, 72, 196 (1903).
- [3] R. AUDUBERT, S. LORMEAU - C.R. Acad. Sc., 228, 318 (1949).
- [4] J. LABEYRIE - J. Phys. Radium, 12, 569 (1951).
- [5] METZGER, BALDINGER, HUBER - Helv. Phys. Acta, 23, 121 (1950).
- [6] A.B. MEINEL, C.Y. FAN - Astrophys. J., 120, 360 (1954).
- [7] E.J. DIETERICH - Phys. Rev., 103, 632 (1956).
- [8] C.Y. FAN - Phys. Rev., 103, 1740 (1956).
- [9] N.P. CARLETON - Phys. Rev., 107, 110 (1957).
- [10] MEEK, CRAGGS - Electrical breakdown of gases - Oxford (1953).
- [11] L. LOEB - Fundamental processes of electrical discharge in gases - John Wiley and sons, (1939) .
- [12] C.O. MUEHLHAUSE - Phys. Rev., 91, 453 (1953).
- [13] O.R. FRISCH - Progress in nuclear physics - Pergamon Press, London (1952).
- [14] E. SEGRE, C. WEIGAND - U. C. R. L., 2152 (1953).
- [15] C. EGGLER, C.M. HUDDLESTON - Phys. Rev., 95, 600 A (1954).
- [16] G.P. BOICOURT, J.E. BROLLEY - Rev. Sc. Instr., 25, 1218 (1954).
- [17] R.A. NOBLES, R.L. HENKEL, R.K. SMITH - Phys. Rev., 99, 616 (1955).
- [18] A.E. VILLAIRE, L.F. WOUTERS - Phys. Rev., 98, 280 (1955).
- [19] A.E. GRUNN, E. SHOPPER - Z. Naturfors, 69, 698 (1951).
- [20] C. EGGLER, C.M. HUDDLESTON - Nucleonics, 14, 4, 34 (1956).
- [21] R.A. NOBLES - R.S.I., 27, 5, 280 (1956).
- [22] A. SAYRES, C.S. WU - R.S.I., 28, 10 (1957).
- [23] L. KOCH, R. LESUEUR - Comptes rendus du 3ème Congrès International sur les phénomènes d'ionisation dans les gaz - Venise (1957).  
L. KOCH, R. LESUEUR - J. Phys. Rad., 19, 103 (1958).
- [24] J.A. NORTHROP, R.A. NOBLES - Nucleonics, 14, 4, 36 (1956).
- [25] M. FORTE - Nuovo Cimento, 3, 1443 (1956).
- [26] P. AVIVI, S.G. COHEN - Phys. Rev., 108, 972 (1957).
- [27] L. KOCH - Comptes rendus du Congrès International d'Electronique Nucléaire - Paris (1958).  
L. KOCH - Comptes rendus du IV<sup>e</sup> Congrès International sur les phénomènes d'ionisation dans les gaz - Uppsala (1959).
- [28] MAURER - Phys. Zeits, 40, 161 (1939).
- [29] L. COLLI, U. FACCHINI - Phys. Rev., 88, 987 (1952).
- [30] L. COLLI - Phys. Rev., 95, 892 (1954).

- [31] H.S.W. MASSEY, E.H.S. BURHOP - Electronic and ionic impact phenomena - Clarendon Press, Oxford (1952).
- [32] M. BAYET - Physique électronique des gaz et des solides - Masson, Paris (1958).
- [33] W. HEITLER - The quantum theory of radiation second edition, p.107 - Univ. Press, Oxford (1944).
- [34] D.R. BATES, A. DAMGAARD - Phil. Trans. A, 242, 101 (1950).
- [35] S. HERON, R.W.P. Mc WHIRTER, E.H. RHODERRICK - Proc. Roy. Soc. 234, 565 (1956).
- [36] A.C.G. MITCHELL, M.W. ZEMANSKI - Resonance radiation and excited atoms - McMillan Cy, New-York - (1954).
- [37] T. HOLSTEIN - Phys. Rev. 72, 1212 (1947). 76, 1257 (1949). 83, 1159 (1951).
- [38] R.A. BUCKINGHAM, A. DALGARNO - Proc. Phys. Soc., A 213, 506 (1952).
- [39] F.M. PENNING, N. de GROOTT - Handbuch der Physik - J. Springer, Berlin (1933).
- [40] A.V. PHELPS, J.P. MOLNAR - Phys. Rev., 89, 1202 (1953). 95, 892 (1954).
- [41] A.H. FUTCH, F.A. GRANT - Phys. Rev. 104, 2 (1956).
- [42] C.F. BARNETT, P.M. STIER - Phys. Rev., 109, 2, 385 (1958).
- [43] H. KALMANN, M. FURST - Phys. Rev., 79, 5, 857 (1950).
- [44] R. LESUEUR - Rapport non publié.
- [45] L. KOCH - J. of Nuclear Energy, 2, (1955).
- [46] L.R. KOLLER - Ultra-violet radiations - John Wiley, New-York (1952).
- [47] J.A. NORTHROP - Rev. Sc. Instr., 29, 5, 437 (1958).
- [48] W.R. BENNET - Rev. Sc. Instr., 28, 1092 (1957).
- [49] E. INN - Spectrochim. Acta, 2, 2, (1955).
- [50] C.Y. FAN - Astrophys. J. - 122, 350 (1955).
- [51] STENBERG - Communication personnelle.
- [52] SLAYTERS - Communication personnelle.
- [53] W. BENNET, C.S. WU, V. HUGHES - B. A. P. S. II, 1, 1, 58 (1956) 2, 1, 54 (1957).
- [54] R.W. NICHOLLS, D. PLEITER - Nature, 178, 1456 (1956).
- [55] W. MAURER, R. WOLF - Z. Phys., 115, 410 (1940).
- [56] J.H. LEES - Proc. Phys. Soc., A 137, 186 (1932).
- [57] Y. KOECHLIN, B. PARLIER - Rapport non publié (1956).  
Y. KOECHLIN - Bull. Inf. Sc. Tech. C.E.A. n° 23 (1958).
- [58] E.K. ZAVOISKI, S.D. FANTCHENKO - Dokl. Acad. Naouk., 100, 4, 661 (1955).
- [59] VLASSOV, FOURSOV - J. of Phys. URSS, 1, 4, 335 (1939).
- [60] J.H. LEES - Proc. Roy. Soc., A 137, 173 (1932).
- [61] A. WARD - Proc. Phys. Soc., A 67, 841 (1954).
- [62] American Institute of Physics Handbook - Mac Graw Hill (1957).
- [63] J.B. BIRKS - Scintillation Counters - Pergamon Press, London (1953).
- [64] C.D. MILTON, J.S. FRASER - Phys. Rev., 90, 388 (1953).
- [65] B. ROSSI, H.H. STAUB - Ionisation chambers and counters - Mac Graw Hill, New-York (1949).
- [66] Y. KOECHLIN, I. PELCHOWITCH - Rapport non publié (1954).
- [67] R. BATCHELOR et al. - Rev. Sc. Instr., 26, 11, 1037 (1955).
- [68] S.A. BALDINE, U.V. CAVRILOVSKY - Atomia Energia, III, 10, 331 (1957).
- [69] E. BREITENBERGER - Progress in nuclear physics, 4, Pergamon Press, London (1955).
- [70] W.J. WHITEHOUSE - Progress in nuclear physics, 2, Pergamon Press, London (1952).
- [71] L.M. BOLLINGER - Deuxième Conférence Internationale P/687, Genève (1958).

## TABLE DES MATIÈRES

|                                                                                             | Pages |
|---------------------------------------------------------------------------------------------|-------|
| I - AVANT-PROPOS.....                                                                       | 5     |
| II - INTRODUCTION.....                                                                      | 7     |
| III - DONNEES THEORIQUES ET EXPERIMENTALES.....                                             | 11    |
| IV - ETUDE EXPERIMENTALE - MECANISMES FONDAMENTAUX DE LA LUMINESCENCE<br>DES GAZ RARES..... | 19    |
| 4.1 - Dispositif expérimental.....                                                          | 19    |
| 4.2 - Etude du spectre d'émission des gaz purs.....                                         | 27    |
| 4.3 - Spectres d'émission des mélanges - Transfert d'énergie.....                           | 35    |
| 4.4 - Durée de vie des états excités.....                                                   | 39    |
| 4.5 - Influence des recombinaisons ioniques sur la luminescence.....                        | 53    |
| V - CARACTERISTIQUES DES SCINTILLATEURS GAZEUX.....                                         | 57    |
| VI - APPLICATION DES SCINTILLATEURS GAZEUX A LA DETECTION DES PARTICULES<br>NUCLEAIRES..... | 71    |
| VII - CONCLUSION.....                                                                       | 75    |
| BIBLIOGRAPHIE.....                                                                          | 77    |

---



DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

LA DETECTION DES RAYONNEMENTS NUCLEAIRES PAR LES SEMI-CONDUCTEURS

Vu et approuvé  
Paris, le 17 Décembre 1959  
Le Doyen de la Faculté des Sciences,  
J. PERES

Vu  
et Permis d'imprimer :  
Le Recteur de l'Académie  
de Paris,  
Jean SARRAILH

IMP. LOUIS-JEAN - GAP

Depôt légal n°166-1960



